

MgO下地膜上に形成したFePt規則合金多結晶垂直磁化膜の構造と磁気異方性

著者	堀田 明良
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	11301甲第17563号
URL	http://hdl.handle.net/10097/00121557

博士学位論文

MgO 下地膜上に形成した
FePt 規則合金多結晶垂直磁化膜の
構造と磁気異方性

東北大学大学院工学研究科 電子工学専攻

堀田 明良

目次

第 1 章	序論	1
1.1	研究の背景	1
1.1.1	磁気記録密度の向上と次世代媒体用材料	1
1.1.2	$L1_0$ -FePt の一軸磁気異方性と構造	7
1.1.3	$L1_0$ -FePt 単結晶垂直磁化膜におけるこれまでの研究	7
1.1.4	$L1_0$ -FePt 多結晶垂直磁化膜におけるこれまでの研究	8
1.1.5	$L1_0$ -FePt におけるバリエント評価	9
1.2	本論文の目的	22
1.3	本論文の構成	23
	参考文献	24
第 2 章	実験方法	27
2.1	成膜方法	27
2.1.1	成膜装置	27
2.1.2	成膜条件	27
2.2	評価方法	30
2.2.1	磁気特性の測定	30
2.2.2	薄膜の構造解析	30
	参考文献	33
第 3 章	磁気トルク波形に基づくバリエント存在率の定量評価法	34
3.1	緒言	34
3.2	AHE トルク波形による K_u 評価	35
3.3	Stoner-Wohlfarth モデルによる AHE トルク波形の印加磁界依存性	39
3.4	単結晶, 多結晶膜を想定したモデルにおける AHE トルク波形	48
3.5	AHE トルク波形のフーリエ解析によるバリエント存在率の定量評価法	51
3.6	結言	58
	参考文献	59

第 4 章	バリエント形成と	
	AHE トルク解析によるバリエント存在率の定量評価	60
4.1	緒言	60
4.2	磁気特性および基本構造	61
4.3	バリエントの構造解析	66
4.4	AHE トルク解析によるバリエント存在率の定量評価	74
4.5	結言	80
	参考文献	81
第 5 章	$L1_0$-FePt 多結晶膜の構造と一軸磁気異方性の	
	基板温度および膜厚依存性	82
5.1	緒言	82
5.2	構造と Ku の基板温度依存性(単結晶膜と比較)	83
5.3	構造と Ku の膜厚依存性	97
5.4	結言	105
	参考文献	107
第 6 章	バリエント低減と高規則化に適したプロセスの検討	108
6.1	緒言	108
6.2	MgO 下地層の表面改質	112
6.3	C の吐出し効果	118
6.4	結言	121
	参考文献	122
第 7 章	結論	123

謝辞

第1章 序論

1.1 研究の背景

1.1.1 磁気記録密度の向上と次世代媒体用材料

ハードディスク装置(Hard Disk Drive, HDD)は情報社会を支える基盤技術であり, PC, モバイル端末, サーバー(ホーム, ビジネス)をはじめとする様々な場面で人々が生み出す情報の保存を担ってきた. 今後は, 情報通信技術の発展による, モノのインターネット化(Internet of Things, IoT)や人工知能の応用[1]に向け, 世界で生み出される様々な情報を保存することが求められる. このような要望に応えるため, HDD は更なる記録密度向上が必要である.

Fig. 1.1.1 に磁気記録媒体における情報記録の模式図を示す. 図の赤, 青の円はそれぞれ磁化方向が 180 度異なる磁性粒子を表している. HDD で用いられるグラニューラー媒体では, 複数の磁性粒子で一つのビットを形成しながら情報を記録する. 記録領域の境界では, 粒子サイズに起因するノイズ(ジッターノイズ)が発生する. (1)信号品質を保って記録密度を向上させるため, 磁性粒子の微細化が必要である. (2)磁性粒子の熱安定性は $K_u V / k_B T$ で表される. ここで K_u , V , k_B , T はそれぞれ一軸磁気異方性, 磁性粒子の体積, ボルツマン定数, 温度である. 磁性粒子を微細化しても熱安定性を保つため, 高い K_u が必要となる. しかし, (3)高い K_u を有する材料では書き込み(磁化反転)に大きな磁界を要するため, 現在のヘッドでは書き込みができない. HDD のさらなる超高記録密度化に向けて, 上記の三棘み(トリレンマ)問題を解決することが求められる(Fig.1.1.2).

トリレンマ問題を解決するための新技術として, 熱アシスト磁気記録(Heat Assisted Magnetic Recording, HAMR)の研究が進められている[2-4]. Fig.1.1.3 に HAMR の模式図を示す. HAMR ではヘッドに搭載した近接場レーザーにより, 書き込みの際に一時的に媒体をキュリー温度程度まで加熱する. 反転磁界を低減させた高温の状態で書き込みを行い, 情報は室温で保存することで, K_u が非常に高い, 熱安定性の高い媒体に対する書き込みが可能になり, トリレンマを解決できるとされている.

HAMR 用媒体の材料においては, 高い K_u とともに, 低いキュリー温度 T_c が求められる.

書き込みの際の温度が T_c より低下すると信号品質が低下することが知られており[5], T_c は保護層や潤滑剤などの媒体設計に大きな制限を与える. Table 1 に代表的な高 K_u 材料の K_u と T_c をまとめた[6]. FePt および CoPt は $L1_0$ -型規則構造を持つことで高い K_u を示すことが知られる. SmCo_5 は高い K_u を示すものの, 希土類元素を含むため, 耐腐食性が悪いなどの短所がある. $L1_0$ -FePt は高い K_u と比較的低い T_c から次世代媒体用材料の有力候補と目されている.

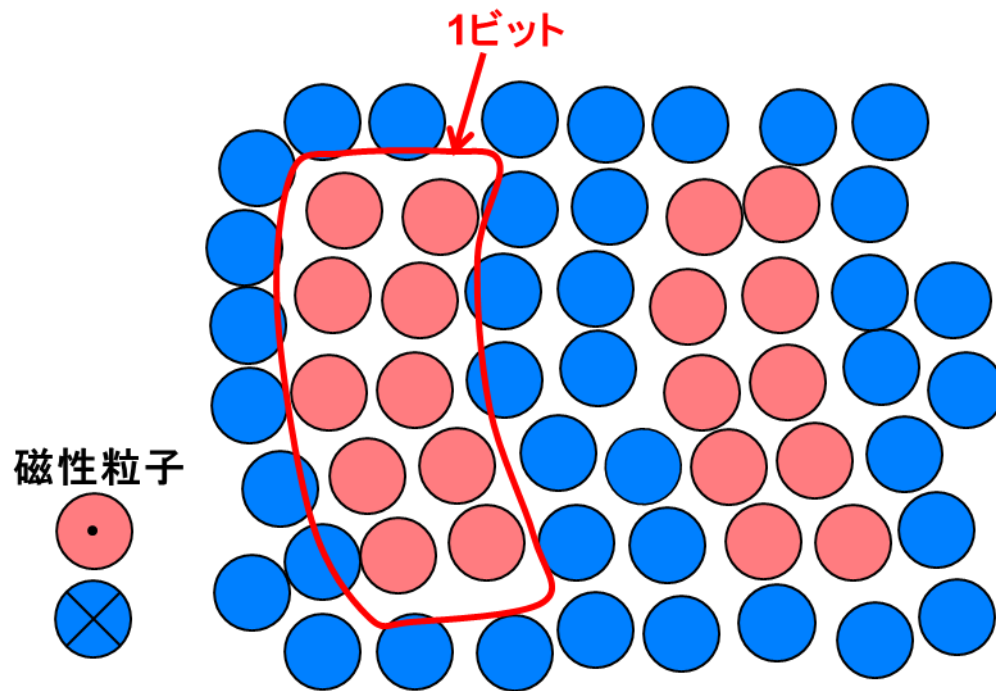


Fig. 1.1.1 磁気記録媒体における情報記録の模式図.
赤, 青の円はそれぞれ磁化方向が 180 度異なる磁性粒子を表している.

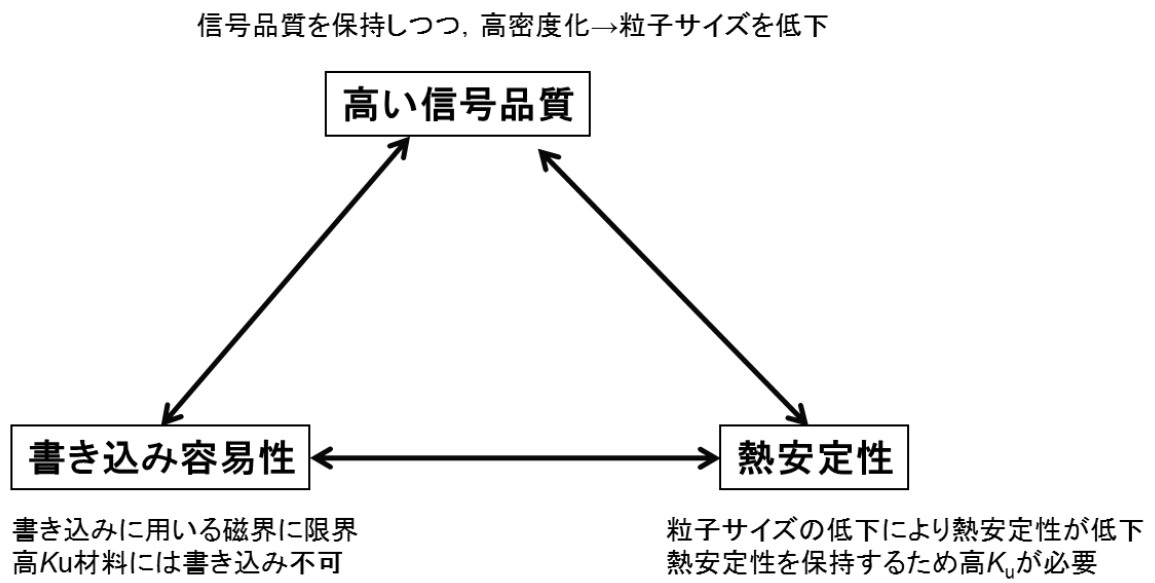


Fig.1.1.2 磁気記録におけるトリレンマ

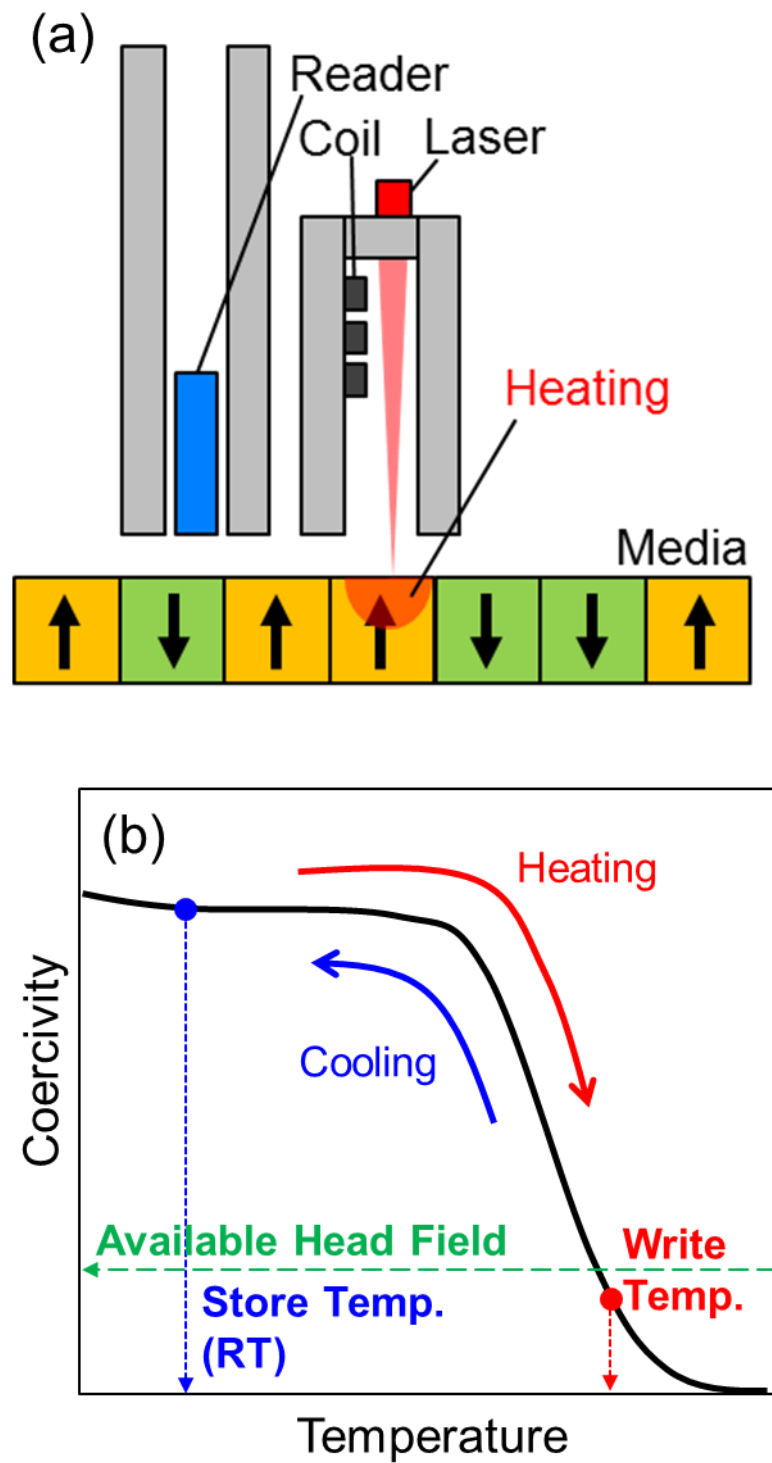


Fig.1.1.3 熱アシスト磁気記録(HAMR)

(a)ヘッドと媒体の模式図, (b)書き込み過程の模式図.

Table 1.1.1 高い一軸磁気異方性を有する代表的な材料

	FePt	CoPt	SmCo ₅
K_u ($\times 10^7$ erg/cm ³)	7	4.9	20
T_c (K)	750	840	1000

1.1.2 $L1_0$ -FePt の一軸磁気異方性と構造

FePt は Fig.1.1.4(b)に示すような $L1_0$ -規則構造を持つことで, c 軸方向に $7 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ 程度の高い一軸磁気異方性 K_u を有することがバルクにおいて古くから知られる[7]. FePt は規則合金化により Pt と Fe の d バンドの混成が進み, Pt のスピン磁気モーメントが誘起, Fe のスピン磁気モーメントが増大, 軌道磁気モーメントが復活する. Pt のもつ大きなスピン軌道相互作用定数により, 系としては強いスピン軌道相互作用が働き, 大きな一軸磁気異方性を発生させることが理論的に知られている[8].

$L1_0$ -FePt は異方性磁界が非常に大きいので, 最大印加磁界が 20 kOe 程度の一般的な振動試料型磁力計(Vibrating Sample Magnetometer, VSM)や磁気異方性トルク測定では高次の項を含めた正確な K_u の評価は困難である. これまで, 単結晶膜や単結晶のバルク試料において, 70 kOe 以上の高い印加磁界における Sucksmith-Thompson 法[9]を用いた測定により, K_u の 1 次, 2 次の項である K_{u1} , K_{u2} の値が報告されている[10-11]. いずれの報告においても $L1_0$ -FePt は K_{u1} が支配的な系であることが知られている.

$L1_0$ -FePt の K_u は, 原子がいかに秩序だった構造を持つかの指標である規則度 S に依存することが実験的に知られている[10],[12, 13]. 近年, Fig. 1.1.5 に示すように, $L1_0$ -FePt の K_u は S^2 に比例することが第一原理計算により理論的に示された[14].

FePt は A1 不規則構造(Fig.1.1.4 (a))から $L1_0$ -構造(Fig.1.1.4 (b))への規則化にともない, 格子変形することが知られている[15]. 垂直磁気記録媒体への応用において, $L1_0$ -構造の c 軸の面直配向が重要である. しかし, a , c 軸長が近く, 面内方向に c 軸が向いた結晶学的ドメイン(バリエント)が容易に形成されるという問題がある. そのため, $L1_0$ -FePt 垂直磁化膜の研究は主に, 面直配向への規則化が容易な単結晶膜を用いて進められてきた.

1.1.3 $L1_0$ -FePt 単結晶垂直磁化膜におけるこれまでの研究

$L1_0$ -FePt 単結晶膜において高い一軸磁気異方性 K_u や規則度 S を得るため, 基板温度や組成などに関して研究が進められてきた.

FePt の規則化には, 原子の移動を促進させるため, 形成時の基板温度の増加や膜形成後の高温熱処理が必要である[16-20]. Fig.1.1.6 に MgO 単結晶基板上に形成した単結晶膜における規則度 S の基板温度依存性を示す[16]. $L1_0$ -FePt において高い規則度を得るために 500 °C 以上の高い基板温度が必要だとわかる.

FePt は 45-64 at. % Fe 組成で $L1_0$ 構造を有することが知られており[21], 規則化には組成が大きく影響する. これまで, Fig. 1.1.7 に示すように, Fe:Pt = 1:1 付近の組成で高い S を示すことが報告されている[16],[22]. しかし, 高 K_u 化に適した組成については意見が分かれている[16][22-24].

FePt の媒体応用に向けては, 表面粗さの低減, 粒肥大化の抑制などの観点から低温での規則化促進が必要である. 低温で規則化を促進させるための手法としては, 格子変形の促進や原子の拡散を利用する方法がある. 前者については, 格子ミスマッチの利用[25-27], 成膜ガス圧の増加[28-30], 第三元素の添加[31-33]等が報告されている. 後者については, Fe と Pt の交互積層[34], Fe/Pt 多層膜[35], natural-bilayer stacking[10],[36-39], 非固溶元素添加[40-41]等が報告されている. ただし, 媒体応用の観点からは, 粒子サイズの低下にともない表面効果が増大することによる, 規則度の低下[42-43]が懸念されている.

単結晶膜においても厚膜化や組成の影響によるバリエーションの形成が報告されている.

Fig.1.1.8 に Ag 単結晶下地上に形成した 55 at.% FePt 単結晶膜における透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope, TEM)を用いた電子回折像を示す[44]. 膜厚 5 nm の FePt 単結晶膜では面直方向への規則化成分に対応する FePt(110)のスポットのみがみられる(Fig.1.1.8(a)). 一方, 膜厚 30 nm では FePt(110)のスポットが弱くなり, バリエーションの規則化成分に対応する FePt(001)のスポットがみられる(Fig.1.1.8(b)). このように, FePt 単結晶膜では低膜厚では面直方向への規則化が優先的となるが, 厚膜化によりバリエーションが形成されることが報告されている[44-45].

組成の影響については, Fig.1.1.9 に示すように, Fe > 55 at.%の FePt 単結晶膜において, X 線回折(X-ray Diffraction, XRD)結果からバリエーションに対応する回折ピーク(FePt(200))が報告されている[15],[18]. バリエーションの形成は面内方向の磁化曲線にも大きく影響することも報告されている.

1.1.4 $L1_0$ -FePt 多結晶垂直磁化膜におけるこれまでの研究

$L1_0$ -FePt の垂直磁気記録媒体への応用に向けて, 量産化に有用なガラス基板上に多結晶下地層を用いて $L1_0$ -FePt 多結晶膜を形成し, グラニューラー化する必要がある. Fig. 1.1.10 に示すように, 多結晶膜は単結晶膜と異なり, FePtと下地層の双方に粒界を有し, FePt の結晶サイズが小さいという特徴がある. グラニューラー化には, 粒分離および規則化の観点から MgO 下地が重要である[46]. また, 薄膜形成後の熱処理では均質なグラニュー

ラー垂直磁化膜を形成しにくいという問題がある。そのため、MgO 下地層を用いて、加熱製膜により、高い面直方向への規則度を持つ $L1_0$ -FePt 多結晶膜の形成が必要である。

$L1_0$ -FePt 多結晶膜形成においては、一軸磁気異方性 K_u の飽和やバリエント形成が課題である。Fig.1.1.11 に $L1_0$ -FePt 多結晶膜と単結晶膜における K_u の基板温度依存性を示す[47]。多結晶膜は基板温度 200 °C から、単結晶膜と比較して大きな K_u が得られるものの、基板温度 300 °C 以上で K_u は飽和している。Fig.1.1.12 に 50 at.%FePt 多結晶膜における XRD パターンの膜厚依存性を示す[48]。多結晶膜では、単結晶膜でバリエント形成の報告がない 50 at.%Fe 組成の薄膜においても、膜厚 4 nm 以上においてバリエントの回折ピーク(FePt(200))が観察されている。また、FePt(111)の回折ピークも確認できる。以上のように、多結晶膜では粒界の影響等によりバリエントの形成が容易となり、高 K_u 化を阻害していることが考えられる。

1.1.5 $L1_0$ -FePt におけるバリエント評価

1.1.4 では $L1_0$ -FePt 多結晶膜においてバリエント形成が問題であることを示した。ここで、バリエントの形成が媒体に与える影響を述べる。データ面密度 1 Tb/in² の超高記録密度媒体において、1 bit の情報は約 650 nm² の領域に記録される。これは、磁性粒子の粒径を 6 nm とすると約 20 個の結晶粒で 1 bit を記録することに相当する。バリエントを含む領域では磁化信号出力の低下や磁化転移点のシフトにより信号品質が劣化することが予想される。以上の点から、バリエントの抑制は $L1_0$ -FePt 媒体の実現に向けた重要な課題である。

バリエントの抑制を検討するため、バリエント存在率を定量的に評価することが必要である。しかし、一般的に薄膜の構造解析で用いられる XRD では $L1_0$ -FePt におけるバリエント存在率の定量評価は極めて困難である。面直配向成分とバリエント成分の存在比は各成分に対応する回折ピークの強度を比較することで求められる。Fig.1.1.13 に $L1_0$ -FePt 多結晶膜の(a)面直、(b)面内における XRD プロファイルを一例として示す。図の赤、青の破線はそれぞれバリエント成分、面直規則化成分の回折角に対応する。例えば、FePt(002), (200)の回折ピークが、面直や面内 XRD で同時に観察される場合、それぞれが面直規則化成分またはバリエント成分の基本線に対応する。しかし、これらのピークは回折角が近く、ピーク分離が困難である。多結晶膜では Fig.1.1.13(b)に示すように、面内 XRD においてバリエント成分の規則線に対応する FePt(001)のピークと、面直配向成分

の規則線に対応する $\text{FePt}(110)$ のピークを独立して解析ができる。ただし、各ピーク強度はそれぞれ、バリエント成分と面直配向成分の規則度に依存しており、各成分の規則度が分からなければバリエント存在率の定量評価は不可能である。特に、バリエント成分は基本線($\text{FePt}(002), (202)$)の回折ピークが面直配向成分の基本線($\text{FePt}(200), (220)$)と分離が難しく、規則度評価が困難である。

近年、平面 TEM 観察を用いたバリエントの定量評価が報告されている [49-50]。Fig.1.1.14 に同手法の一例[49]を示す。a, c, e, g は電子線回折像であり、b, d, f, h はそれぞれ対応する領域を矢印で示している。a では $\text{FePt}(110)$ のスポットがみられ、面直方向に規則化している。c では $\text{FePt}(001)$ のスポットがみられ、バリエントとわかる。e では規則化に対応するスポットがみられない。g では $\text{FePt}(110), (001)$ がともに観察されている。このように、ナノ領域の回折スポット解析により局所的な結晶方位を同定していくことで、バリエントの定量評価を行った結果が i に示されている。ただし、同手法は試料の加工や解析に多く時間を要する点が課題である。

このように、構造解析によるバリエントの定量評価は困難である。また、バリエント形成が一軸磁気異方性 K_u に与える影響について議論した報告はない。そこで、磁気的手法によるバリエント存在率の定量評価手法を確立し、 K_u に与える影響の明確化することが必要と考えた。

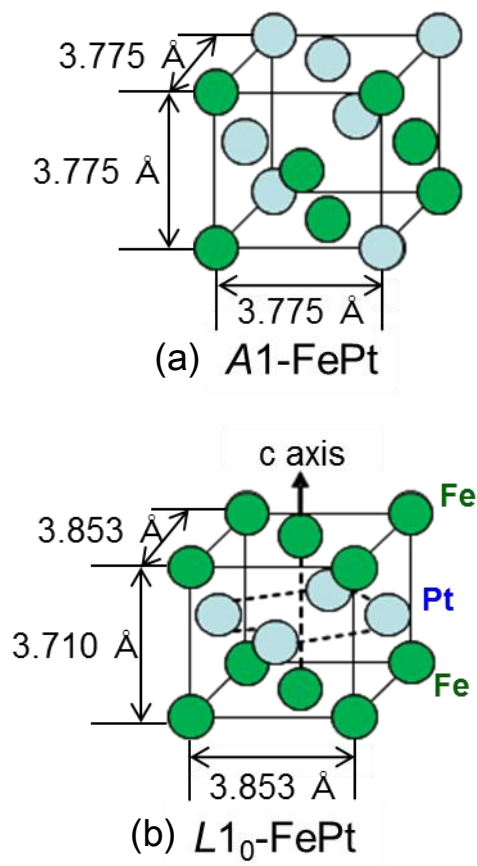


Fig.1.1.4. FePt の結晶格子(a)A1 構造(b)L₁₀構造

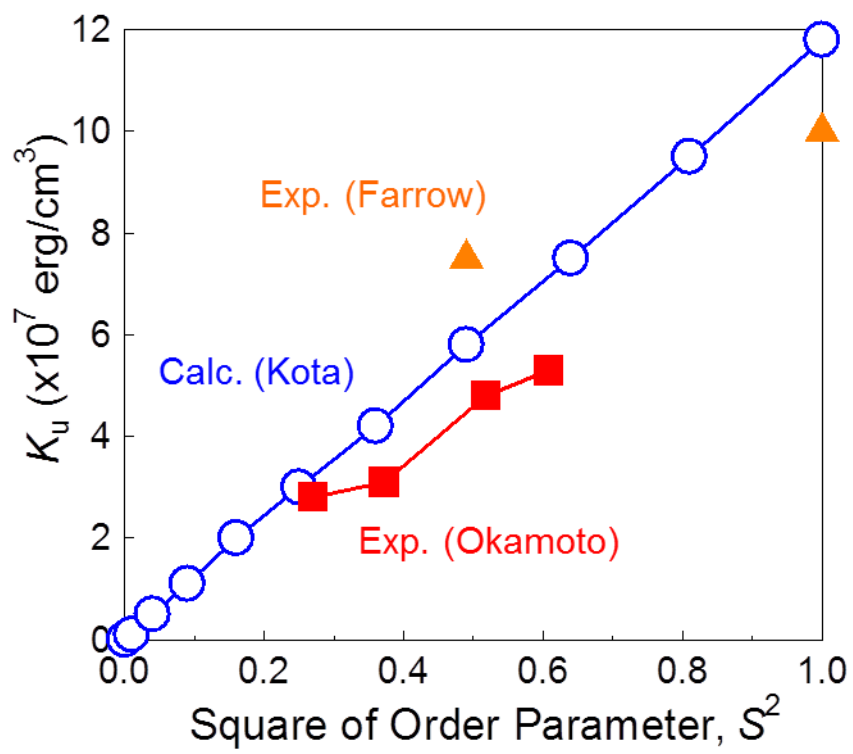


Fig.1.1.5 $L1_0$ -FePt における規則度と K_u の関係[14].

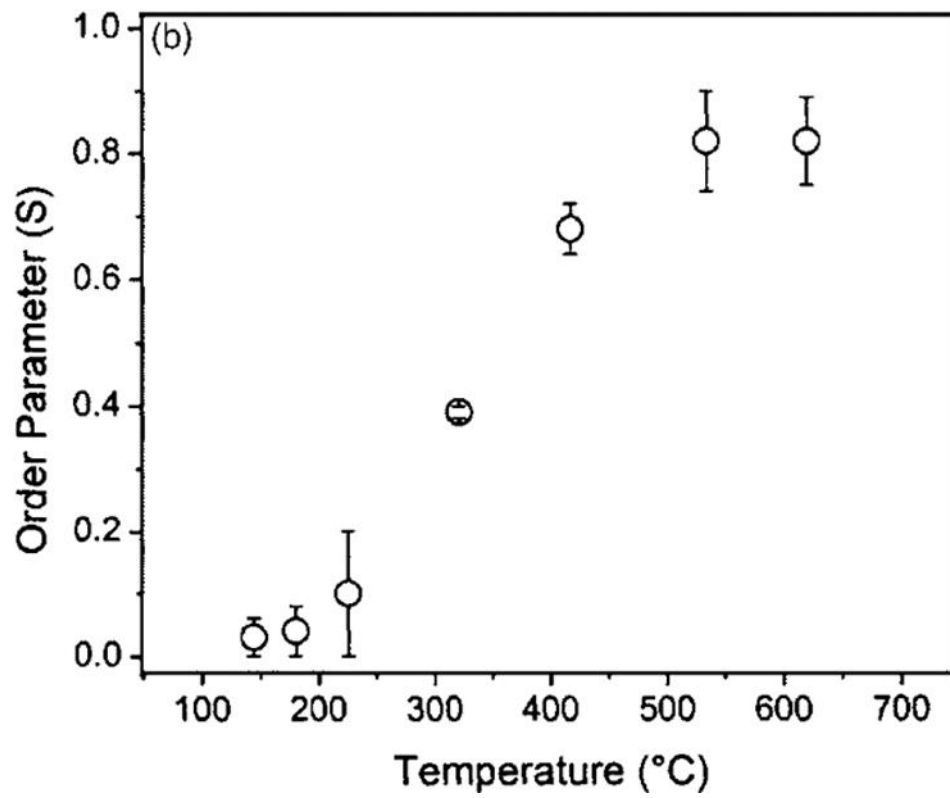


Fig.1.1.6 L_{10} -FePt 単結晶膜の規則度の基板温度依存性[16].

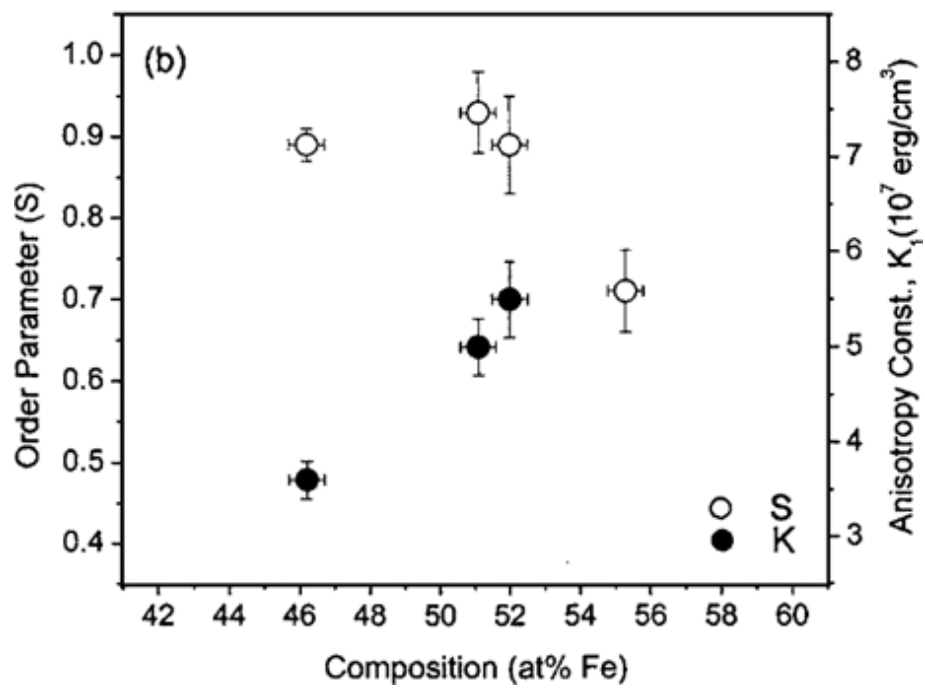


Fig.1.1.7 $L1_0$ -FePt 単結晶膜の一軸磁気異方性と規則度の Fe 組成依存性[22].

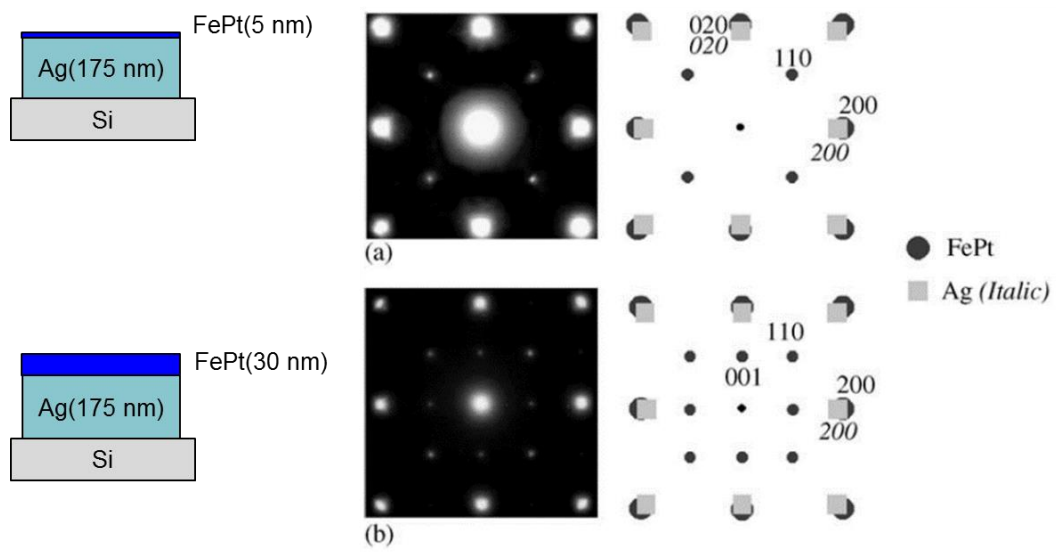


Fig.1.1.8 Ag 単結晶下地上に形成した 55 at.% FePt 単結晶膜における透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope, TEM)を用いた電子回折像[44].

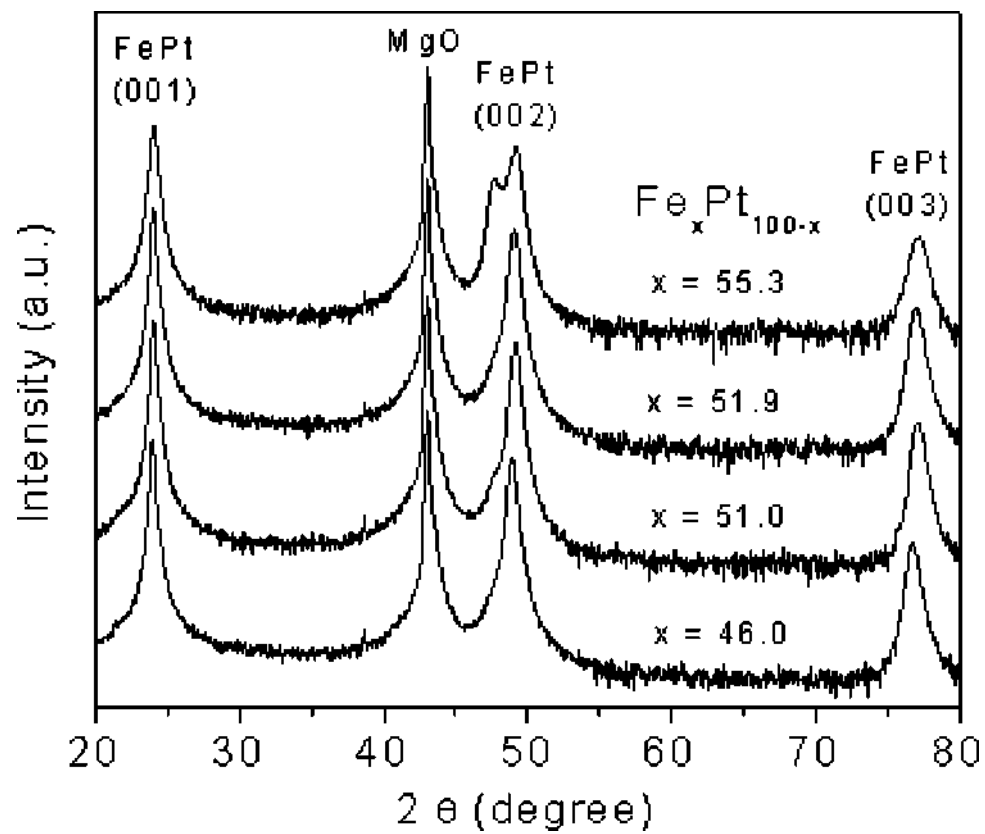


Fig.1.1.9 $L1_0$ -FePt 単結晶膜の Fe 組成に対する XRD パターンの変化[22].

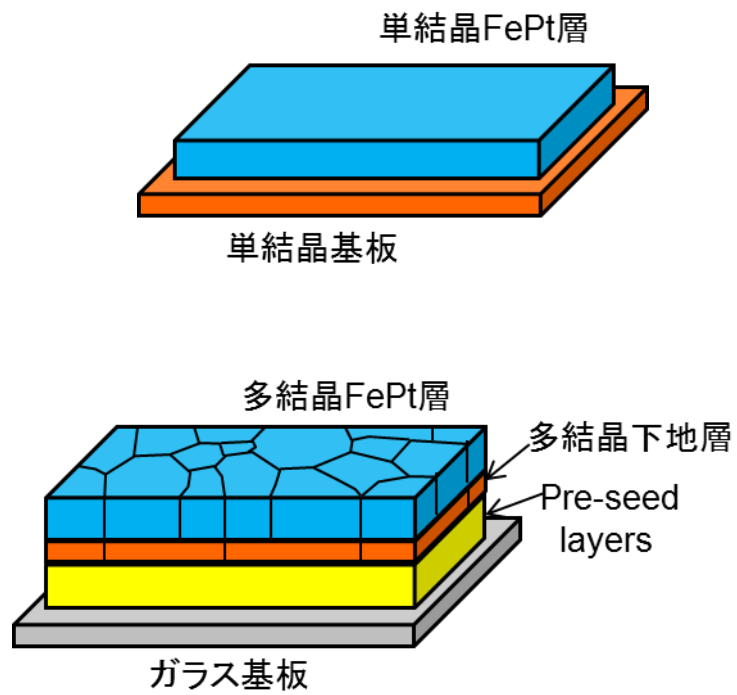


Fig.1.1.10 単結晶膜および多結晶膜の模式図.

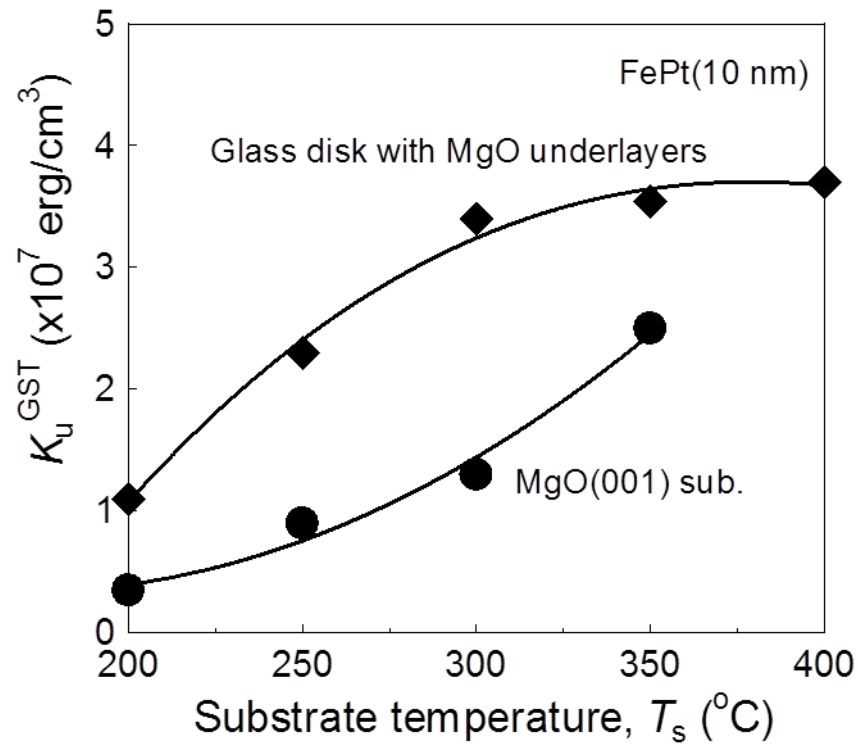


Fig.1.1.11 $L1_0$ -FePt 多結晶膜, 単結晶膜における K_u の基板温度依存性[47].

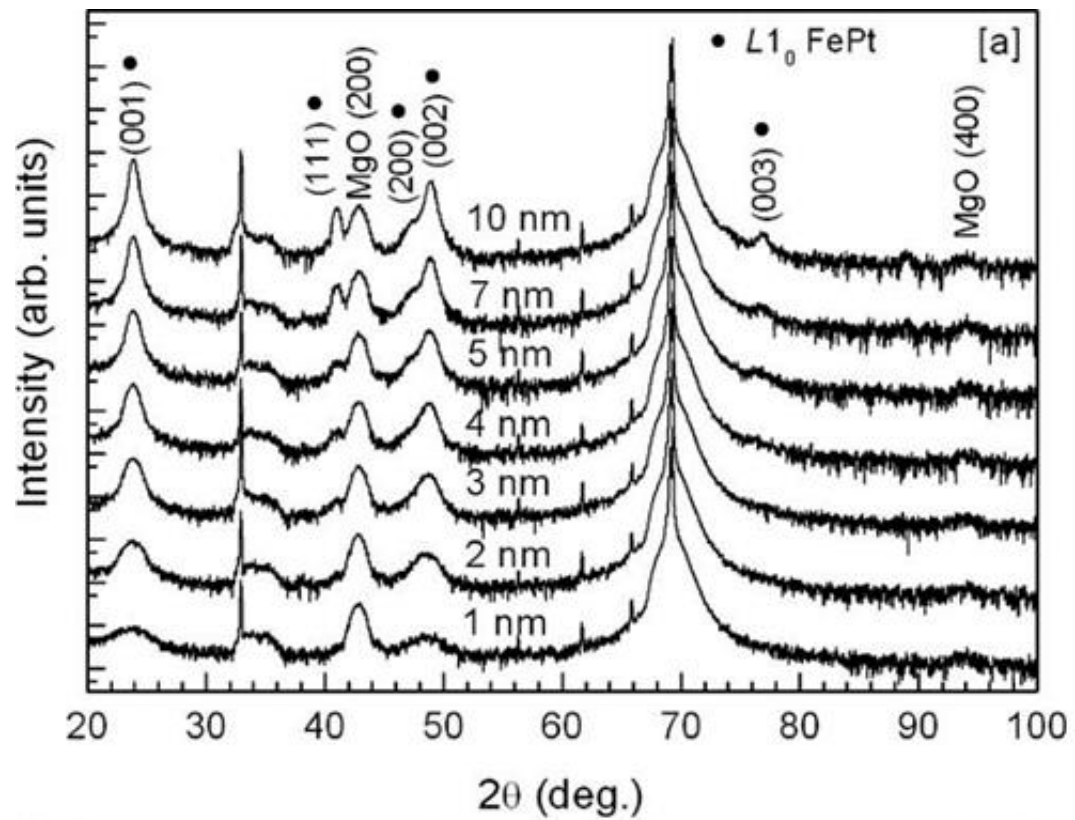
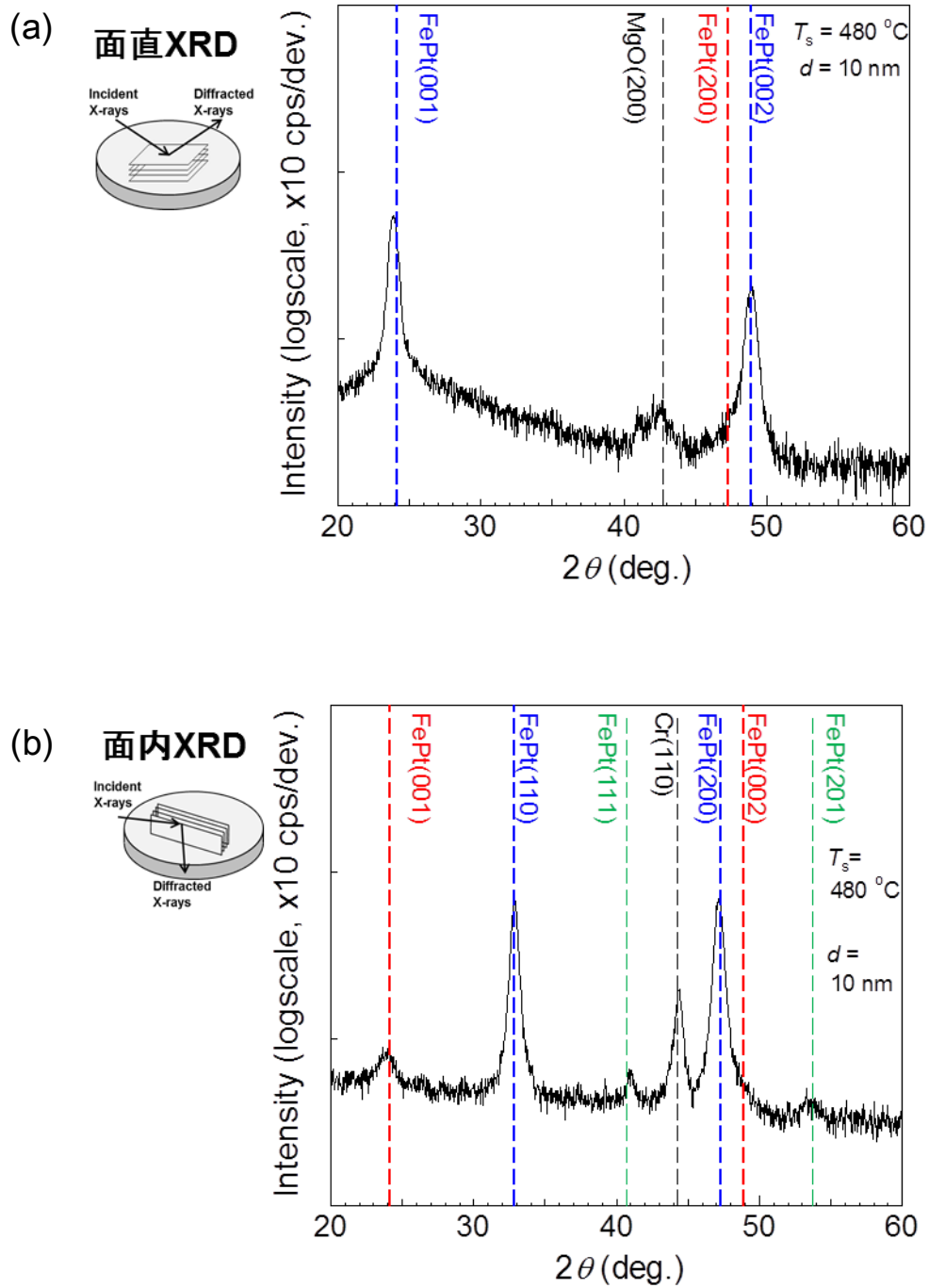


Fig. 1.1.12 $L1_0$ -FePt 多結晶膜における XRD パターンの膜厚依存性[48].

Fig.1.1.13 $L1_0$ -FePt 多結晶膜の(a)面直, (b)面内方向の XRD パターン.

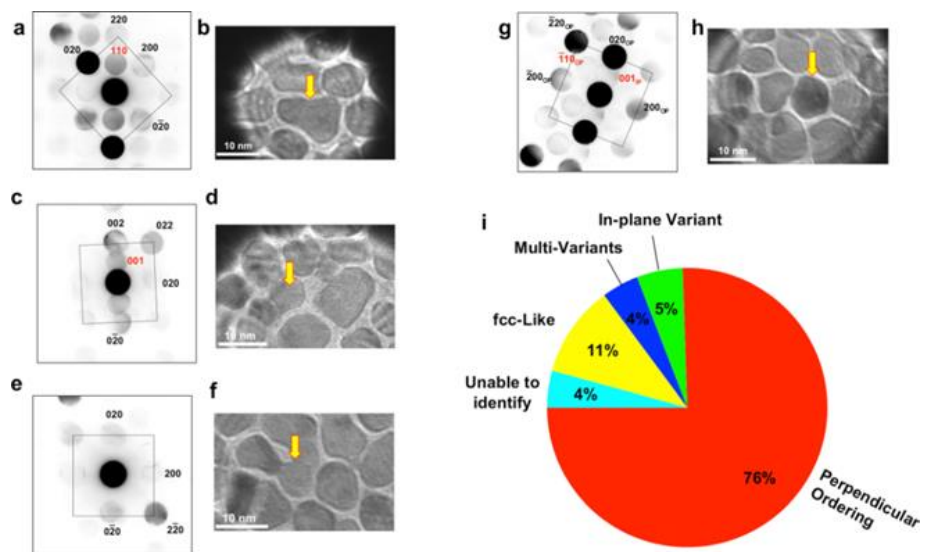


Fig. 1.1.14 平面 TEM 観察を用いたバリエントの定量評価[49]

1.2 本論文の目的

前節で述べたように, $L1_0$ -FePt は高い一軸磁気異方性と比較的低いキュリー温度から HAMR 用次世代磁気記録媒体の有力候補である. 媒体応用に向けて, 面直方向への規則化が重要だが, 量産化に適した多結晶膜においては面内方向に規則化した結晶学的ドメイン(バリエント)が磁気記録媒体の信号品質の劣化を引き起こすため, その抑制が必要である. そのためにはバリエントの構造を詳しく解析し, その存在率の定量的な評価が必要である. しかし, 構造解析によるバリエントの定量評価は困難である. また, バリエント形成が一軸磁気異方性に与える影響について議論した報告はない.

以上の背景を踏まえ, 本研究では次世代磁気記録媒体の実現に向けて, $L1_0$ -FePt 多結晶膜の構造(規則度, バリエント)と一軸磁気異方性に関する現状の課題を解析し, 高い面直方向への規則度をもつ多結晶膜形成の指針を得ることを目的とした.

まず, 本研究では磁気的手法によるバリエント存在率の定量評価手法を確立することを目的とした. さらに, 標準的な条件で作製した $L1_0$ -FePt 多結晶膜についてバリエントの構造を詳しく解析し, バリエント存在率を定量的に評価することを目指した. 次に, $L1_0$ -FePt 多結晶膜におけるバリエント形成に関する問題を明確化するため, 規則度やバリエントといった構造と一軸磁気異方性の基板温度や膜厚に対する依存性を解析した. 最後に, 高規則化とバリエント抑制の両立に適したプロセスの検討を行った.

1.3 本論文の構成

以下に本論文の構成を記述する.

第 1 章では, 背景, そしてそれを踏まえて本論文の目的を示した.

第 2 章では, 研究に用いた成膜装置, 薄膜試料の構成, 物性評価方法を記述する.

第 3 章では, 磁気トルク波形解析に基づくバリエーション存在率の定量評価法を提案した.

3.2 節では, 本研究で用いた異常ホール効果(Anomalous Hall Effect, AHE)を利用した磁気トルク波形(AHE トルク波形)測定に基づく一軸磁気異方性の評価方法を述べる.

3.3, 3.4 節では Stoner-Wohlfarth モデルに基づいて, バリエーションが混在する系における AHE トルク波形の印加磁界依存性の解析について述べる. 3.5 節では AHE トルク波形のフーリエ解析結果からバリエーション存在率の定量評価法を提案する.

第 4 章では, $L1_0$ -FePt 多結晶膜に関し第 3 章で提案した手法を用いてバリエーションを解析した. 4.2 節では作製した試料の磁気特性および基本構造を述べる. 4.3 節では多結晶膜におけるバリエーション形成機構やバリエーションの構造について述べる. 4.4 節では, バリエーション存在率の定量評価結果を述べる.

第 5 章では, $L1_0$ -FePt の規則化やバリエーション形成に影響すると考えられる基板温度および膜厚に対する依存性の解析結果を述べる. 5.2 節では基板温度を変化させて作製した多結晶膜について, 単結晶膜と比較しながら構造(規則度やバリエーション等)と一軸磁気異方性の関係を解析した. 5.3 節では構造と一軸磁気異方性の膜厚依存性の解析から膜厚が規則化やバリエーション形成に与える影響について考察した.

第 6 章では, 第 5 章までに得られた知見をもとに, バリエーション低減と高規則化に適したプロセスを検討した.

最後に, 第 7 章において, 本論文の結論を述べる.

参考文献

- [1] 総務省編 平成 28 年版情報通信白書
- [2] M. Kryder, E. C. Gage, T. W. McDaniel, W. A. Challener, R. E. Rottmayer, G. Ju, Y.-T. Hsia, and M. F. Erden, *Proc. IEEE*, **96**, 1810 (2008).
- [3] A. Q. Wu, Y. Kubota, T. Klemmer, T. Rausch, C. Peng, Y. Peng, D. Karns, X. Zhu, Y. Ding, E. K. C. Chang, Y. Zhao, H. Zhu, K. Gao, J.-U. Thiele, M. Seigler, G. Ju, and E. Gage, *IEEE Trans. Magn.*, **49**, 779(2013).
- [4] ASTC Technology Roadmap, 2016
- [5] A. F. Torabi, J. V. Ek, E. Champion, and J. Wang, *IEEE, Trans. Magn.*, **45**, 3848(2009).
- [6] D. Weller, A. Moser, L. Folks, M. E. Best, W. Lee, M. F. Toney, M. Schwickert, J.-U. Thiele, and M. F. Doerner, *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 10(2000).
- [7] O. A. Ivanov, L. V. Solina, V. A. Demshina, and L. M. Magat, *Phys. Met. Metallogr.* **35**, 81 (1973).
- [8] A. Sakuma, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **63**, 3053 (1994).
- [9] W. Sucksmith and J. E. Thompson, *Proc. Roy. Soc.*, **A225**, 362(1954).
- [10] S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, T. Miyazaki, Y. Shimada, and K. Fukamichi, *Phys. Rev. B*, **66**, 024413 (2002).
- [11] K. Inoue, H. Shima, A. Fujita, K. Ishida, K. Oikawa, and K. Fukamichi, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 102503(2006).
- [12] R. F. C. Farrow, D. Weller, R. F. Marks, and M. F. Toney, *J. Appl. Phys.*, **79**, 5967 (1996).
- [13] H. Kanazawa, G. Lauhoff, and T. Suzuki, *J. Appl. Phys.*, **87**, 6143 (2000).
- [14] Y. Kota, and A. Sakuma, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 084705 (2012).
- [15] K. Watanebe, Private Communication(1992).
- [16] K. Barmak, J. Kim, L. H. Lewis, K. R. Coffey, M. F. Toney, A. J. Kellock, and J.-U. Thiele, *J. Appl. Phys.*, **98**, 033904 (2005).
- [17] Y. K. Takahashi, and K. Hono, *Magn. Soc. Jpn.*, **29**, 72 (2005).
- [18] C. L. Platt, K. W. Wierman, E. B. Svedberg, R. Van de Veerdonk, J. K. Haward, A. G. Roy, and D. E. Laughlin, *J. Appl. Phys.*, **92**, 6104 (2002).

- [19] Y. Fuji, T. Miyazaki, S. Okamoto, O. Kitakami, Y. Shimada, and J. Koike, *J. Magn. Soc. Jpn.* **28**, 376 (2004).
- [20] M. Ohtake, S. Ouchi, F. Kirino, and M. Futamoto, *J. Appl. Phys.*, **111**, 07A708 (2012).
- [21] H. Okamoto: *Phase diagram for binary alloys*, 371 (ASM International, Ohio, 1995).
- [22] K. Barmak, J. Kim, L. H. Lewis, K. R. Coffey, M. F. Toney, A. J. Kellock, and J-U. Thiele, *J. Appl. Phys.*, **95**, 7501 (2004).
- [23] T. Seki, T. Shima, T. Tahanashi, Y. Takahashi, E. Matsubara, and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 2461 (2003).
- [24] K. Barmak, J. Kim, D. C. Berry, W. N. Hanani, K. Wierman, E. B. Svedberg, and, H. K. Howard, *J. Appl. Phys.*, **97**, 024902 (2005).
- [25] T. Seki, T. Shima, K. Takahashi, E. Matsubara, Y. K. Takahashi, and K. Hono, *J. Appl. Phys.*, **96**, 1127 (2004).
- [26] Y. F. Ding, J. S. Chen, E. Liu, C. J. Sun, and G. M. Chow, *J. Appl. Phys.*, **97**, 10H303 (2005).
- [27] A. M. Zhang, Z. X. Chen, W. Q. Zou, B. Lv, J. J. Ge, H. L. Cai, J. Du, X. S. Wu, S. J. Zhang, and S. M. Zhu, *J. Appl. Phys.*, **111**, 07A704 (2012)
- [28] D. W. Hoffman and J. A. Thornton, *J. Vac. Sci. Tech.*, **20**, 355 (1982)
- [29] T. Suzuki, K. Harada, N. Honda, and K. Ouchi, *J. Magn. Magn. Mater.*, **193**, 85 (1999).
- [30] S. N. Hsiao, F. T. Yuan, H. W. Chang, H. W. Huang, S. K. Chen, and H. Y. Lee, *Appl. Phys. Lett.*, **94**, 232505 (2009).
- [31] T. Maeda, T. Kai, A. Kikitsu, T. Nagase, and J. Akiyama, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 2147 (2002)
- [32] H. Yamaguchi, O. Kitakami, S. Okamoto, Y. Shimada, K. Oikawa, and, K. Fukamichi, *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 2001 (2001).
- [33] K. Nishimura, K. Takahashi, H. Uchida, and M. Inoue, *J. Magn. Magn. Mater.*, **272**, 2189 (2004).
- [34] T. Shima, T. Moriguchi, S. Mitani, and K. Takanashi, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 288 (2002).
- [35] Y. Endo, N. Kikuchi, O. Kitakami, and Y. Shimada, *J. Appl. Phys.*, **89**, 7065 (2001).
- [36] L. Bouzidi, V. Pierron-Bohnes, O. Haemmerle, C. Bouillet-Ulhaq, M. C. Cadeville, *Thin Solid Films*, **318**, 215 (1998).

- [37] G. R. Harp, D. Weller, T. A. Rabedeau, R. F. C. Farrow and M. F. Toney, *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 2493 (1993)
- [38] H. Sato, T. Shimatsu, Y. Okazaki, H. Muraoka, H. Aoi, S. Okamoto, and O. Kitakami, *J. Appl. Phys.*, **103**, 07E114 (2008).
- [39] K. Okuyama, T. Shimatsu, S. Kuji, and M. Takahashi, *IEEE Trans. Magn.* **31**, 3838 (1995).
- [40] O. Kitakami, Y. Shima, *Material Jpn.*, **40**, 786(2001).
- [41] O. Kitakami, Y. Shimada, K. Oikawa, H. Daimon, and K. Fukamichi, *Appl. Phys. Lett.*, **78**, 1104 (2001).
- [42] Y. K. Takahashi, T. Ohkubo, M. Ohnuma, and K. Hono, *J. Appl. Phys.*, **93**, 7166 (2003).
- [43] Y. K. Takahashi, T. Koyama, M. Ohnuma, and K. Hono, *J. Appl. Phys.*, **95**, 2690 (2004).
- [44] Y-N. Hsu, S. Jeong, D. E. Laughlin and D. N. Lambeth, *J. Magn. Magn. Mater.*, **260**, 282 (2003).
- [45] Y-N. Hsu, S. Jeong, D. E. Laughlin and D. N. Lambeth, *J. Appl. Phys.* **89**, 7068 (2001).
- [46] M. Weisheit, L. Dvhultz, and S. Fahler, *J. Appl. Phys.*, **95**, 7489 (2004)
- [47] T. Shimatsu, Y. Inaba, H. Kataoka, J. Sayama, H. Aoi, S. Okamoto, and O. Kitakami, *J. Appl. Phys.*, **109**, 07B726 (2011)
- [48] A. Perumal, Y. K. Takahashi, T. O. Seki, and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 132508 (2008).
- [49] H. Ho, J. Zhu, A. Kulovits, D. E. Laughlin, and J-G. Zhu, *J. Appl. Phys.*, **116**, 193510 (2014).
- [50] J. Wang, S. Hata, Y. K. Takahashi, H. Sepehri-Amin, B. S. D. Ch. S. Varaprasad, T. Shiroyama, T. Schrefl, and K. Hono, *Acta Mater.*, **91**, 41 (2015).

第2章

実験方法

2.1 成膜方法

2.1.1 成膜装置

本研究で検討を行った FePt 薄膜の作製には、超高真空スパッタ装置(ANELVA 社製 E8002)を用いた(到達真空度 $\sim 1.0 \times 10^{-7}$ Pa). このスパッタ装置の構成を Fig.2.1.1 に示す. 本装置は, A と C の 2 室のプロセスチャンバー, チャンバー間の搬送を行うロボットが収容されている TR チャンバー, 試料の取り出しを行う LL チャンバーから構成されている. 各プロセスチャンバーには, それぞれカソードが 5 つずつついており, RF が 2 機, DC 電源が 4 機付いている. 各材料の成膜速度を変化させることで, 絶縁体と金属との強制固溶膜や, 数種類の金属からなる合金膜における物性値の組成に対する依存性などに関して検討することが可能である. また, プロセスチャンバーを大気に戻すことなく, 基板トレイを交換することで, シリンダ上に製膜することが可能である. 基板については, 4 inch や 2.5 inch ディスク基板, 10 mm 角基板などへの成膜が可能である.

2.1.2 成膜条件

本研究において標準となる FePt 薄膜は組成を 50 at.% Fe とし, 膜厚を 10 nm, 成膜時の基板温度を 400 °C とした. 組成の制御に関しては, Fe, Pt のターゲットを同時放電し, ターゲットに投入する電力を調整することで, それぞれの成膜レートを制御した. 作製した FePt 膜の組成は, ラザフォード後方散乱分光法 (Rutherford Backscattering Spectrometry: RBS) を用いた分析の結果から, 50 ± 1.0 at. % Fe であることを確認している. 多結晶膜は, MgO 下地膜を用いて HDD 用ガラスディスク上に形成した. プレシード層としては上層から順に, Cr(20 nm)/MgO(1 nm)/Ta(5 nm)を用いた. さらに, 一部のサンプルでは保護層として Ta(5 nm)/Pt(5 nm)を用いている. 単結晶膜は MgO(001)単結晶基板上

に形成した.

プロセスガスとしては Ar を使用している. 結晶性を向上させるため, プロセスガスは不純物濃度 1 ppm 以下の高純度ガスを使用しており, 更にプロセスチャンバー内に投入する直前に, 純化機を通すことで不純物濃度を数 ppb まで低減している. 成膜時の Ar ガス圧は FePt 磁性層形成時には Pt の表面偏析を促進するため 3 Pa という高い圧力を設定している. シード層およびプレシード層においては, それぞれ 0.016 Pa, 0.3 Pa という比較的低い圧力を設定している.

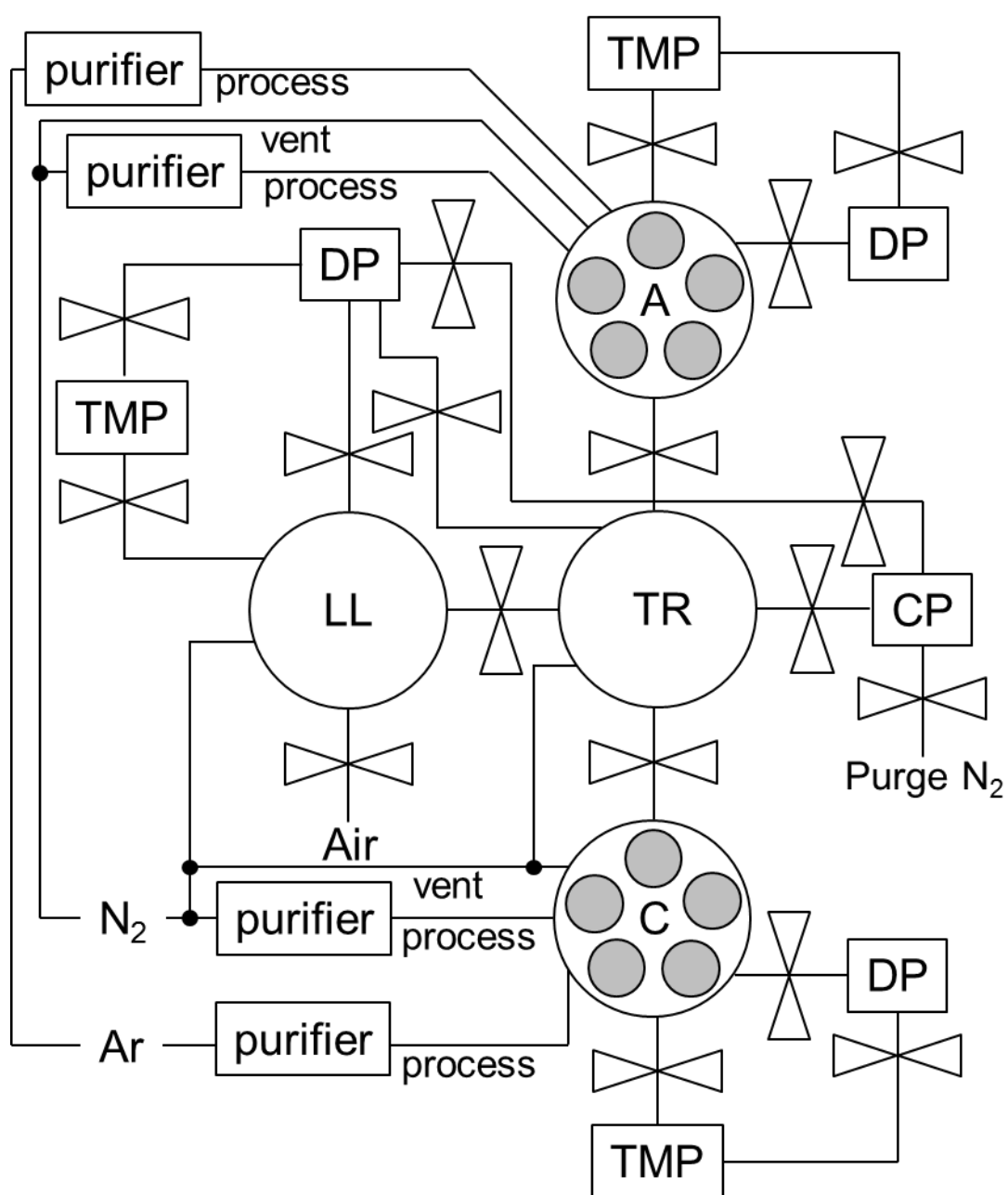


Fig. 2.1.1 超高真空スパッタ装置.

2.2 評価方法

2.2.1 磁気特性の測定

FePt 膜の飽和磁化 M_s および保磁力 H_c は、玉川製作所製の振動試料型磁力計 (Vibrating Sample Magnetometer, VSM, 最大印加磁界 30 kOe) を用いて評価した。保磁力 H_c が高く、VSM では磁化を飽和することが困難な試料については、カンタムデザイン社製の物理特性装置 (Physical Property Measurement System, PPMS, 最大印加磁界 90 kOe) を用いて磁化を飽和させ、VSM を用いて残留磁化 M_r を測定し、以下の式を用いて M_s を評価した。

$$M_s = M_r / (M_r / M_s)_{\text{meas}}. \quad (2.2.1)$$

ここで、 $(M_r / M_s)_{\text{meas}}$ は PPMS を用いて評価した磁化曲線から算出した残留磁化比である。

磁化曲線および一軸磁気異方性は、PPMS を用いて、異常ホール効果測定により解析した。詳細な評価方法については第3章に記述する。

2.2.2 薄膜の構造解析

薄膜の構造解析には、面直および面内 X 線回折 (X-ray diffraction, XRD)、走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope, SEM)、透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope, TEM) および球面収差補正操作透過電子顕微鏡 (spherical-aberration constant corrected Scanning Transmission Electron Microscope, Cs-STEM) を用いた。

薄膜の面直規則化成分およびバリエーション成分の c 軸長 c , c_v は、面直および面内 XRD 測定より得られた FePt 002, 001 面の回折角から、以下に示す Bragg の回折条件を用いて算出した[1]。

$$\begin{aligned} 2d\sin\theta &= \lambda \\ d &= \lambda / 2\sin\theta. \end{aligned} \quad (2.2.2)$$

ここで、 d は格子面間隔、 θ は Bragg の回折角、 λ は X 線の波長である。

また、規則度 S は面直 XRD 測定により得られた $L1_0$ -FePt 001, 002 面の回折ピークの積分強度比を用いて以下の式により算出した。

$$S = ((I_{001}/I_{002}) / (I_{001}^*/I_{002}^*))^{1/2}. \quad (2.2.3)$$

ここで、 I_{001} , I_{002} は測定によって得られた $L1_0$ -FePt 001, 002 面の回折ピークの積分強度、 I_{001}^* , I_{002}^* はこれらの理論強度をそれぞれ表している。

XRD における回折ピークの理論強度は以下の式で示される.

$$I^* = F^2 \times P \times A(\theta) \times e^{2M} \times (2/\sin 2\theta) \times ((1 + \cos^2 2\alpha \cos^2 2\theta)/(1 + \cos^2 2\alpha)). \quad (2.2.4)$$

ここで, F は構造因子, P は多重度因子, $A(\theta)$ は吸収因子, e^{2M} は温度因子, $(2/\sin 2\theta)$ は Lorentz 因子, $((1 + \cos^2 2\alpha \cos^2 2\theta)/(1 + \cos^2 2\alpha))$ はモノクロメータを使用した際の偏り因子, 2α はモノクロメータの回折角である. また, M は $B(\sin \theta / \lambda)^2$ で表される. B は温度因子である.

測定試料の軸分散が大きい場合, Fig2.2.1 に示すように, XRD 装置のディテクターに入る回折線の強度は低下する. これにより, 回折線の理論強度と実測値に差が生じる. S を正確に評価するため, 理論強度計算において, 軸分散 $\Delta\theta_{50}$ の値に応じて以下に示す誤差関数を用いて補正を行った[2].

$$\text{erf}(2 \times \ln(2) \times (\arcsin((D/R \sin 2\theta) / \Delta\theta_{50})). \quad (2.2.5)$$

ここで, D はディテクターの開口幅, R はサンプルからディテクターまでの距離である. 補正の精度については, 同一の結晶面からの回折線である FePt 001,003 面のピーク強度比を実測値と比較し確認を行った.

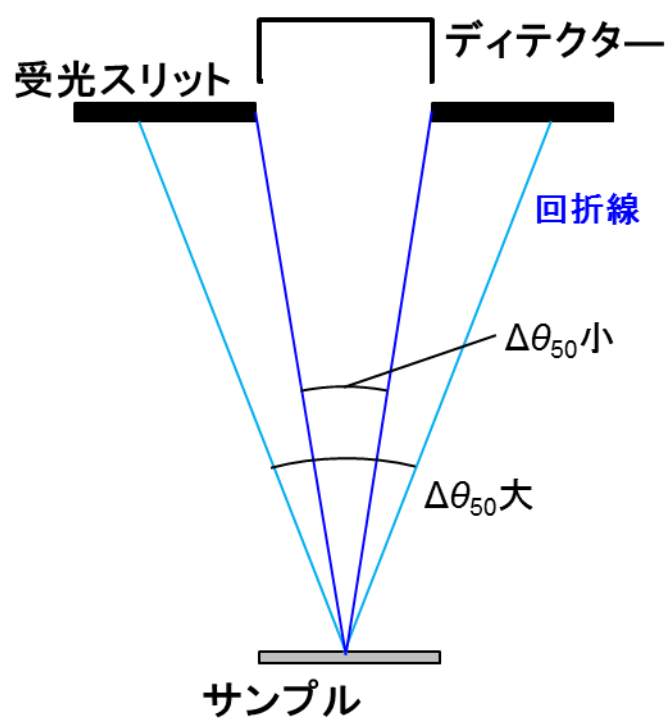


Fig.2.2.1. 軸分散による検出強度の低下.

参考文献

- [1] 例えば, B. D. Cullity, “Elements of X-ray Diffraction” (Addison-Wesley, Reading, 1956).
- [2] E. Yang, D. E. Laughlin and J. G. Zhu, *IEEE Trans. Magn.*, **48**, 7 (2012).

第3章

磁気トルク波形に基づく バリエーション存在率の定量評価法

3.1 緒言

序論でも述べたように、データ面密度 1 Tbit/in^2 を超える超高記録密度 $L1_0$ -FePt グラニュラー媒体の実現に向けては、 $L1_0$ -構造の c 軸が面内に向いた結晶学的ドメイン(バリエーション)の抑制が重要である。しかし、一般に構造解析に用いられる XRD や平面 TEM 観察を用いた手法ではバリエーションの存在率の定量評価は困難である。また、バリエーション形成が一軸磁気異方性 K_u に与える影響について議論した報告はない。

そこで、本章では異常 Hall 効果(anomalous Hall effect, AHE)を用いた磁気トルク波形(AHE トルク波形)解析によるバリエーション存在率の定量評価法を提案する。

3.2 節では本研究で用いる AHE トルク波形測定による一軸磁気異方性の評価法を述べる。3.3 節ではバリエーションの存在が AHE トルク波形に与える影響を検討するため、Stoner-Wohlfarth モデルを用いて AHE トルク波形を計算した。はじめに、モデルの適用条件を定め、バリエーションが単一方向に形成されると仮定した簡易モデルについて、AHE トルク波形の印加磁界依存性を解析した結果を述べる。3.4 節では実際の単結晶膜、多結晶膜を想定したモデルにおける AHE トルク波形を示し、3.5 節では AHE トルク波形に影響する因子である①面直規則化成分の一軸磁気異方性、②バリエーション成分と面直規則化成分の一軸磁気異方性の比、③バリエーションの存在率、④印加磁界を変化させたときの一軸磁気異方性定数を解析し、バリエーション存在率の定量評価手法を提案した。3.6 節は結言である。

3.2 AHEトルク波形による一軸磁気異方性評価

本研究では、異常 Hall 効果(anomalous Hall effect:AHE)を用いて磁気トルク波形を測定し、磁化方向 θ_M に対するトルク波形(AHE トルク波形)を評価することで一軸磁気異方性定数を評価した. Fig. 3.2.1 に測定系の模式図を示す. ϕ と θ_M はそれぞれ印加磁界 H と磁化 M の膜面直方向とのなす角である. なお, ϕ の値はホール素子を用いて in situ で正確に評価している. 系の磁気異方性エネルギー $E_a(\theta_M)$ は以下の式で表されるので [1],

$$E_a(\theta_M) = K_1 \sin^2 \theta_M + K_2 \sin^4 \theta_M. \quad (3.2.1)$$

トルク T は以下の式で与えられる.

$$T = M_s H \sin(\phi - \theta_M). \quad (3.2.2)$$

$$T = -(K_1 + K_2) \sin 2\theta_M + (K_2/2) \sin 4\theta_M. \quad (3.2.3)$$

一軸磁気異方性定数 K_1 , K_2 は測定により得られた AHE トルク波形をフーリエ解析し, (3.2.3)式にフィッティングすることで算出した. Fig.3.2.2 に測定された代表的な AHE トルク波形を一例として示す. なお, 測定に用いた試料は基板温度 400 °C で作製した膜厚 10 nm の $L1_0$ -FePt 多結晶膜である. 赤い点で示される実測値に対して, 実線で示されるフィッティング結果はよく一致している. 膜の実効的な一軸磁気異方性 K は結晶磁気異方性に加え, 薄膜試料における形状異方性を考慮し, 以下の式を用いて算出した.

$$K = (K_1 + K_2) + 2\pi M_s^2. \quad (3.2.4)$$

ここで, AHE トルク波形測定と一般的な磁気トルク波形測定との違いを述べる. Table 3.2.1 に各測定法の模式図, 評価成分, 評価角度についてまとめた. AHE トルク波形測定においては, AHE 信号を評価するため, 膜中の垂直磁化成分のみに対応したトルク波形を測定する. このとき, 異方性磁界よりも大きな印加磁界で測定を行うことで, 磁気異方性エネルギーの対称性を反映した波形が得られる. 一方, 一般的な磁気トルク波形測定においては, 試料を弾性細線で吊るし, 印加磁界方向に対して弾性細線に加わるトルクを計測する. このとき, 計測されるのは試料の全磁化に起因するトルクである. また, 測定結果は磁場方向に対する波形であるため, 正確に高次の異方性定数を求めるためには, 異方性磁界よりも数十倍大きな磁界を印加することが必要である.

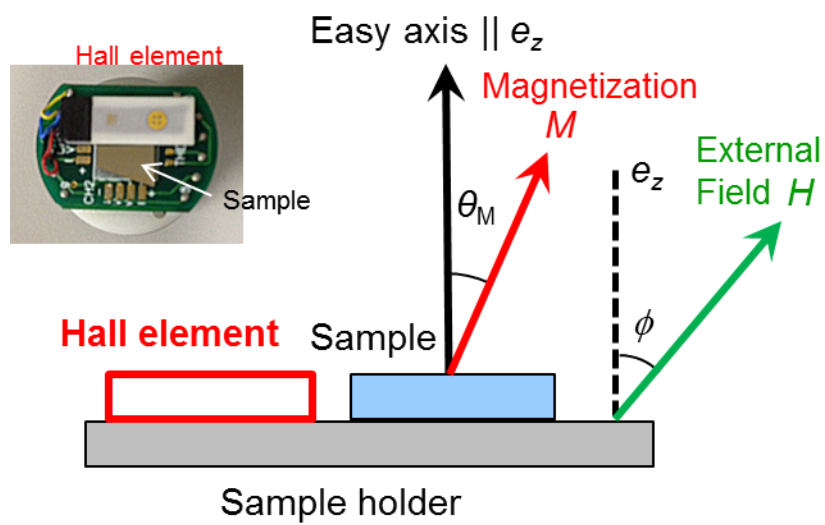


Fig. 3.2.1 AHE トルク波形測定の様式図。
磁界 H は Hall 素子を用いて評価している。

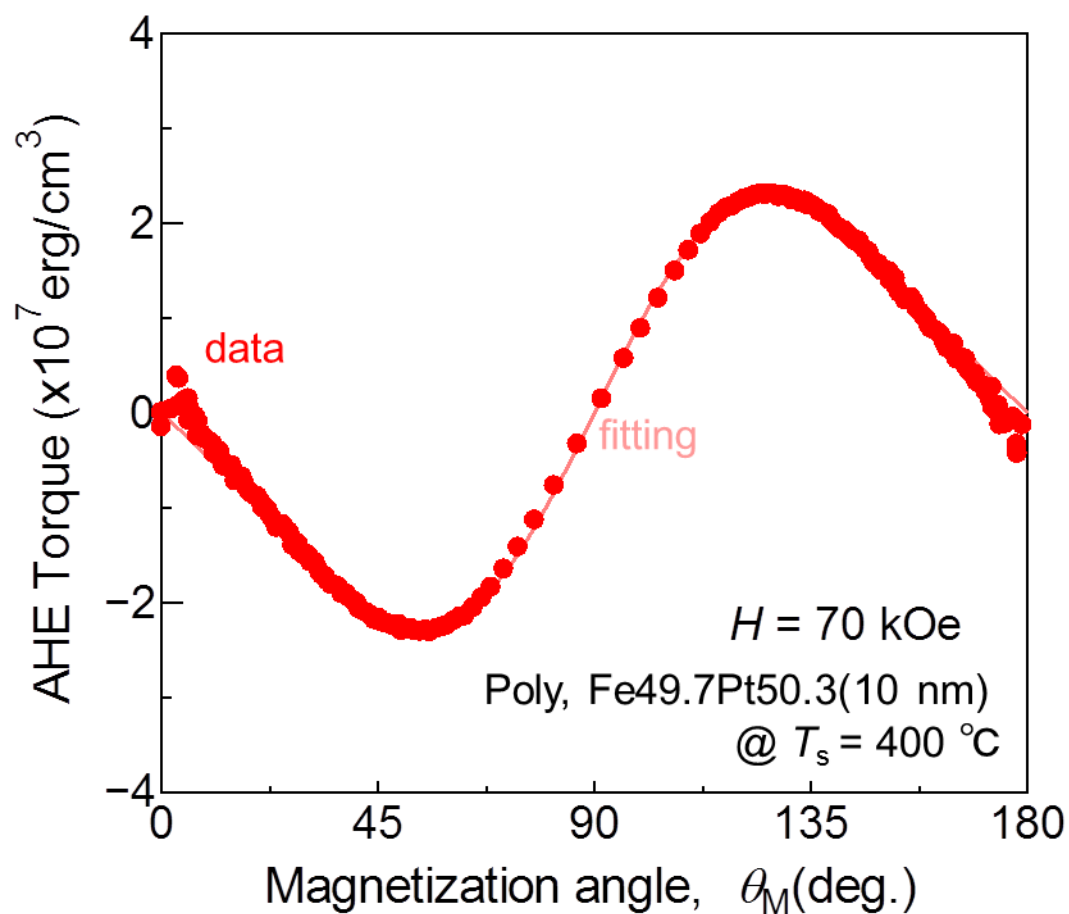
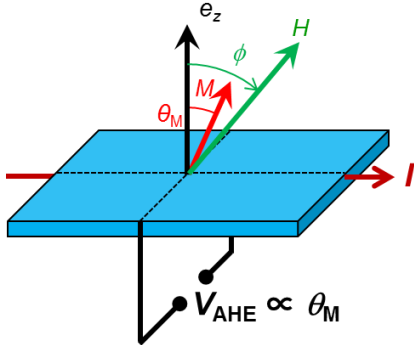
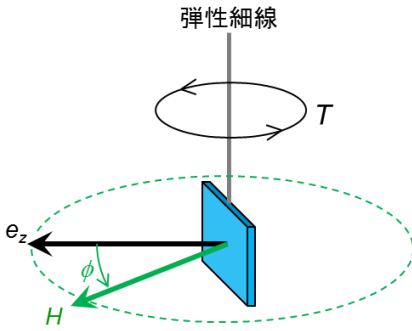


Fig. 3.2.2 AHE トルク測定で得られる波形の一例.

プロットは基板温度 $400 \text{ }^\circ\text{C}$ で形成した $L1_0$ -FePt 多結晶膜(膜厚 10 nm)の測定結果.

実線は(3.2.3)式によるフィッティング.

Table 3.2.1 AHE トルク波形測定と一般的な磁気トルク波形測定の比較.

	AHEトルク波形測定	磁気トルク波形測定
模式図		
評価成分	垂直磁化成分	試料の全磁化
評価角度	磁化方向, θ_M	磁場方向, ϕ

3.3 Stoner-Wohlfarth モデルによる

AHE トルク波形の印加磁界依存性

本節では、バリエーション成分が混在する系の AHE トルク波形を計算する。面直規則化成分とバリエーション成分は交換結合しており、正確な磁化挙動の評価にはシミュレーションが必要である。しかし、非常に極端なケースでは単純な解析的近似も可能である。それは、スピンの交換長 L_{ex} とバリエーションサイズ L_v の関係が a) $L_v \gg L_{\text{ex}}$ または b) $L_v < L_{\text{ex}}$ のときである。Fig.3.3.1 にバリエーションサイズと交換長の関係について模式図を示す。図中、上付き文字の \perp , \parallel はそれぞれ面直規則化成分、バリエーション成分に対応している。本論文では、a) を想定して、Stoner-Wohlfarth (S-W) を用いて面直規則化成分とバリエーション成分の結晶粒の単純な体積分率の重ね合わせで計算を行った。なお、b) の場合、面直規則化成分とバリエーション成分の粒子間に相互作用が生じるため、各成分の粒子を S-W 的なふるまいをする粒子として取り扱うことはできない。

Fig.3.3.2 に $L1_0\text{-FePt}$ におけるスピンの交換長 L_{ex} と一軸磁気異方性定数 K_u の関係を示す。ここで $L_{\text{ex}} = \pi(A/K_u)^{1/2}$ であり、 A は交換スチフネス定数である。なお、 $L1_0\text{-FePt}$ における A の大きさについては先行研究をもとに $1 \times 10^{-6} \text{ erg/cm}$ とした[2]。 $K_u = 3 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ とすると、 $L_{\text{ex}} = 5 \text{ nm}$ 程度であり、バリエーションサイズ L_v がこれより大きい場合計算モデルを適用できる。

計算に用いた座標系を Fig.3.3.3 に示す。x-y 平面は面内方向、x-z 平面は磁界の変化方向である。図の \mathbf{e} は磁化容易軸の方向ベクトルを示している。各物理量や軸がなす角の定義を Table 3.3.1 に示す。Fig.3.3.3(a) に示すように、面直規則化成分の磁化容易軸 \mathbf{e}^\perp の方向は z 軸と一致しており、 $\Omega = 0$, $\theta = \psi$ である。また、磁界 \mathbf{H} に対して磁化 \mathbf{M}^\perp は x-z 平面で変化するため $\omega = 0$ である。一方、Fig.3.3.3(b) に示すように、バリエーション成分の磁化容易軸 \mathbf{e}'' は x-y 平面に存在し、 \mathbf{H} に対して磁化 \mathbf{M}'' は x-y-z 空間を三次元的に変化する。

印加磁界が ϕ 方向に加わるとき、面直規則化成分およびバリエーション成分の磁化に働くエネルギーは磁化が x 軸となす角 ω , z 軸となす角 ψ を用いて次式でそれぞれ表される。

面直規則化成分:

$$E(\omega, \psi) = (1/2)(1 - \cos^2 \psi) - h^\perp (\sin \psi \sin \phi + \cos \psi \cos \phi) + 2\pi(M_s/H_k^\perp) \cos^2 \psi. \quad (3.3.1)$$

バリエーション成分:

$$E(\omega, \psi) = (1/2)(1 - \sin^2 \psi \cos^2(\omega - \Omega)) - h'' (\sin \psi \cos \omega \sin \phi + \cos \psi \cos \phi) + 2\pi(M_s/H_k'')\cos^2 \psi. \quad (3.3.2)$$

ここで、各式の第一項は一軸磁気異方性エネルギー、第二項はゼーマンエネルギー、第三項は静磁エネルギーを示している。 h は印加磁界を異方性磁界 $H_k = 2K_u/M_s$ で規格化した値($h = H/H_k$, 以降は規格化印加磁界と呼称)である。 h^\perp , h'' はそれぞれ面直規格化成分、バリエーション成分の異方性磁界($H_k^\perp = 2K_u^\perp/M_s$, $H_k'' = 2K_u''/M_s$)を用いた規格化印加磁界である。面直規格化成分およびバリエーション成分に関して、(3.3.1),(3.3.2)式を ω , ψ について偏微分し、 ϕ に対してエネルギーが極小となる磁化方向を算出した。

AHE 測定は垂直方向成分の磁化を反映した信号を評価する。そのため、面直規格化成分 M^\perp とバリエーション成分 M'' の合成ベクトル M の面直方向成分を議論することが必要である。 M^\perp と M'' の合成ベクトル M の x-z 平面への投影は次式で表される。

$$M(x, z) = (1 - f_v) M^\perp(x^\perp, z^\perp) + (f_v/n) M''_1(x''_1, z''_1) + \cdots + (f_v/n) M''_n(x''_n, z''_n). \quad (3.3.3)$$

ここで、 f_v , n はそれぞれバリエーション存在率、バリエーション方向の分割数を示している。(3.3.3)式から合成ベクトルが z 軸となす角 θ_M は次式で表される。

$$\theta_M = \arccos(z/|M|). \quad (3.3.4)$$

AHE トルク波形は印加磁界の大きさ H , 方向 ϕ および算出した θ_M を(3.2.2)式に代入して求めた。なお、計算において $M_s = 1000 \text{ emu/cm}^3$ とした。

バリエーションの影響を検討するため、①一軸磁気異方性 K_u^\perp , ②バリエーション成分と面直規格化成分の一軸磁気異方性の比 K_u''/K_u^\perp , ③バリエーション存在率 f_v , ④規格化印加磁界 h^\perp を変数として計算を行った。

はじめに、Fig.3.3.4 に示すように、バリエーション成分が磁界回転面内の x 軸にのみ形成された系($n = 1$, $\Omega = 0 \text{ deg.}$)に対し、AHE トルク波形の印加磁界依存性を計算した。

Fig.3.3.5 に算出した AHE トルク波形の規格化印加磁界 h^\perp 依存性を示す。ここでは、 $K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $K_u''/K_u^\perp = 1$, $f_v = 15 \text{ vol. \%}$ として計算した結果を一例として示す。

Fig.3.3.5(a)-(d)は面直規格化成分 M^\perp とバリエーション成分 M'' の AHE トルク波形、Fig.3.3.5(e)-(h)は合成磁化 M の AHE トルク波形を示している。規格化印加磁界が小さい領域($h^\perp = 0.8 - 5$, Fig.3.3.5(a)-(c))では面直規格化成分とバリエーション成分の波形がひずんでいる。ここで、各成分における波形のピーク位置に着目すると、位相が一致していないことがわかる。面直規格化成分とバリエーション成分の磁界の回転に対する磁気トルクの位相の違いにより、合成磁化の波形は見かけ上、高次の対称性が生じている(Fig.3.3.5(e)-(g))。一方、規格化印加磁界が大きいとき($h^\perp = 50$, Fig.3.3.5(d)), 面直規格化成分とバリエーション成分における波形のひずみは消失し、ピーク位置は一致している。

これにより, 合成磁化の波形としては, 振幅が減少する(Fig.3.3.5(h)).

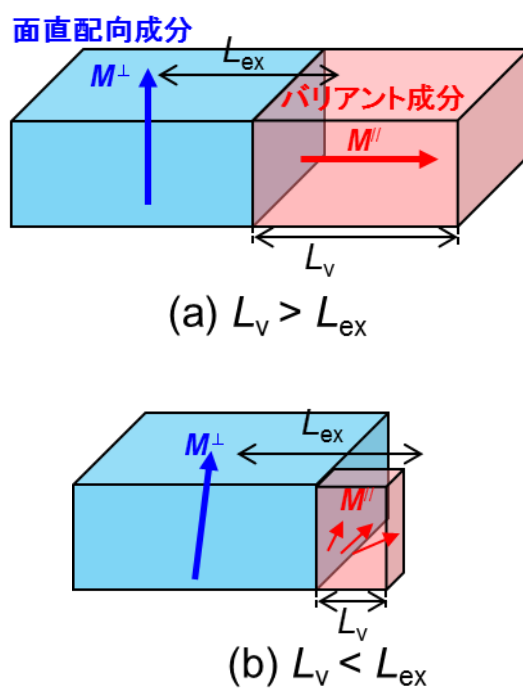


Fig.3.3.1 スピンの交換長 L_{ex} とバリエントサイズ L_v の模式図.

(a) $L_v > L_{ex}$, (b) $L_v < L_{ex}$.

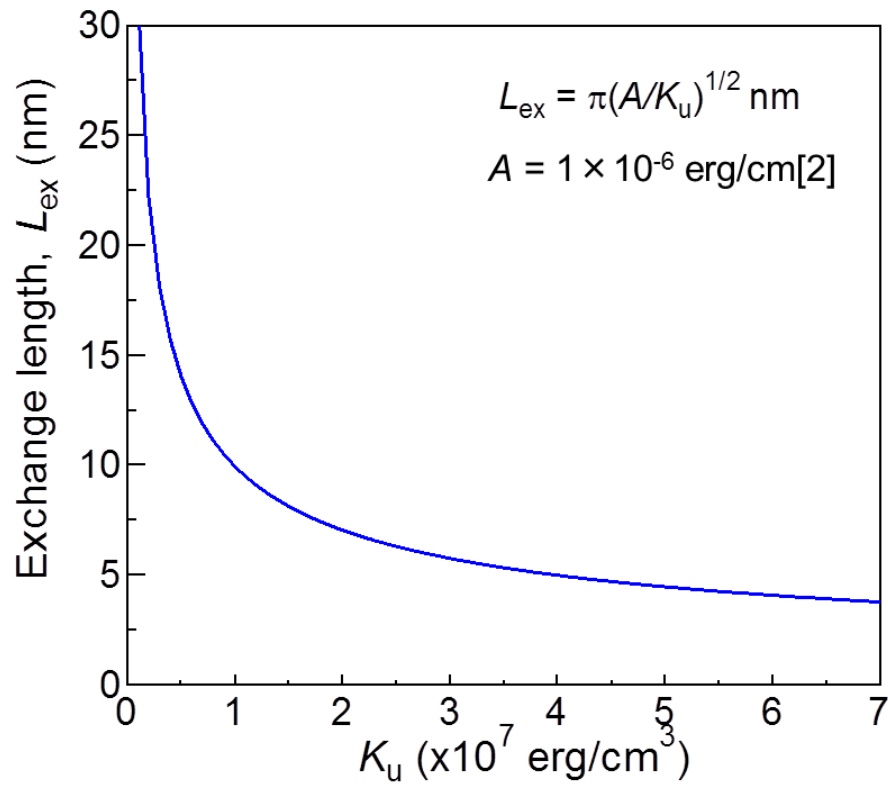


Fig.3.3.2 スピンの交換長 L_{ex} と K_u の関係.

実線は交換スティフネス定数 $A = 1 \times 10^{-6} \text{ erg/cm[2]}$ として,

$L_{\text{ex}} = \pi (A/K_u)^{1/2}$ より算出した値を示す.

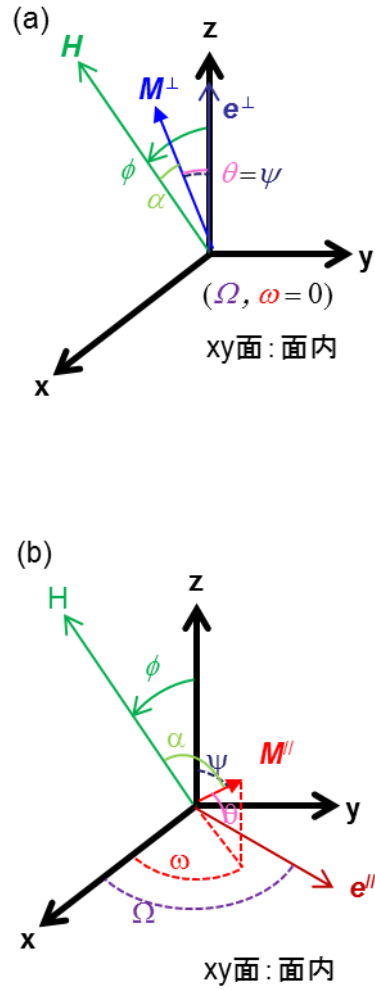


Fig.3.3.3 計算に用いた物理量の 3 次元的な方位関係.

x-z 平面を磁界 H の変化方向とした.

(a)面直規則化成分:磁化容易軸 e^{\perp} の方向は z 軸と一致. $\omega, \Omega = 0$. $\theta = \psi$.

(b)バリエーション成分:磁化容易軸 e^{\parallel} の方向は x-y 平面.

Table 3.3.1 角度の定義

記号	定義
θ	磁化が容易軸となす角
ϕ	磁界が面直方向(z軸)となす角
ψ	磁化が面直方向(z軸)となす角
ω	磁化がx軸となす角
Ω	磁化容易軸がx軸となす角
α	磁化が磁界となす角

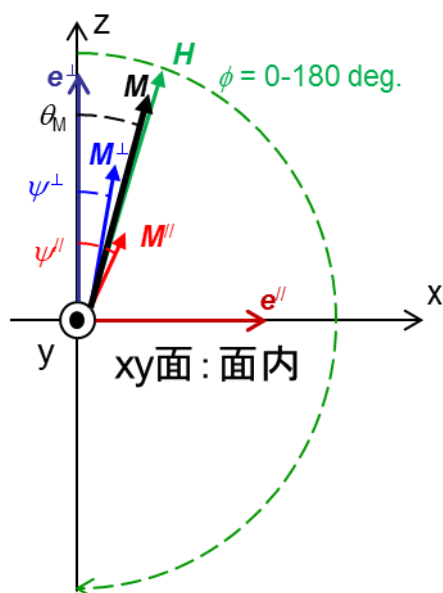


Fig.3.3.4 簡易モデルの模式図. x-z 平面は磁界 H の変化方向.
バリエント成分の磁化容易軸 e^{\parallel} は x 軸方向にのみ存在($\omega, \Omega = 0$).

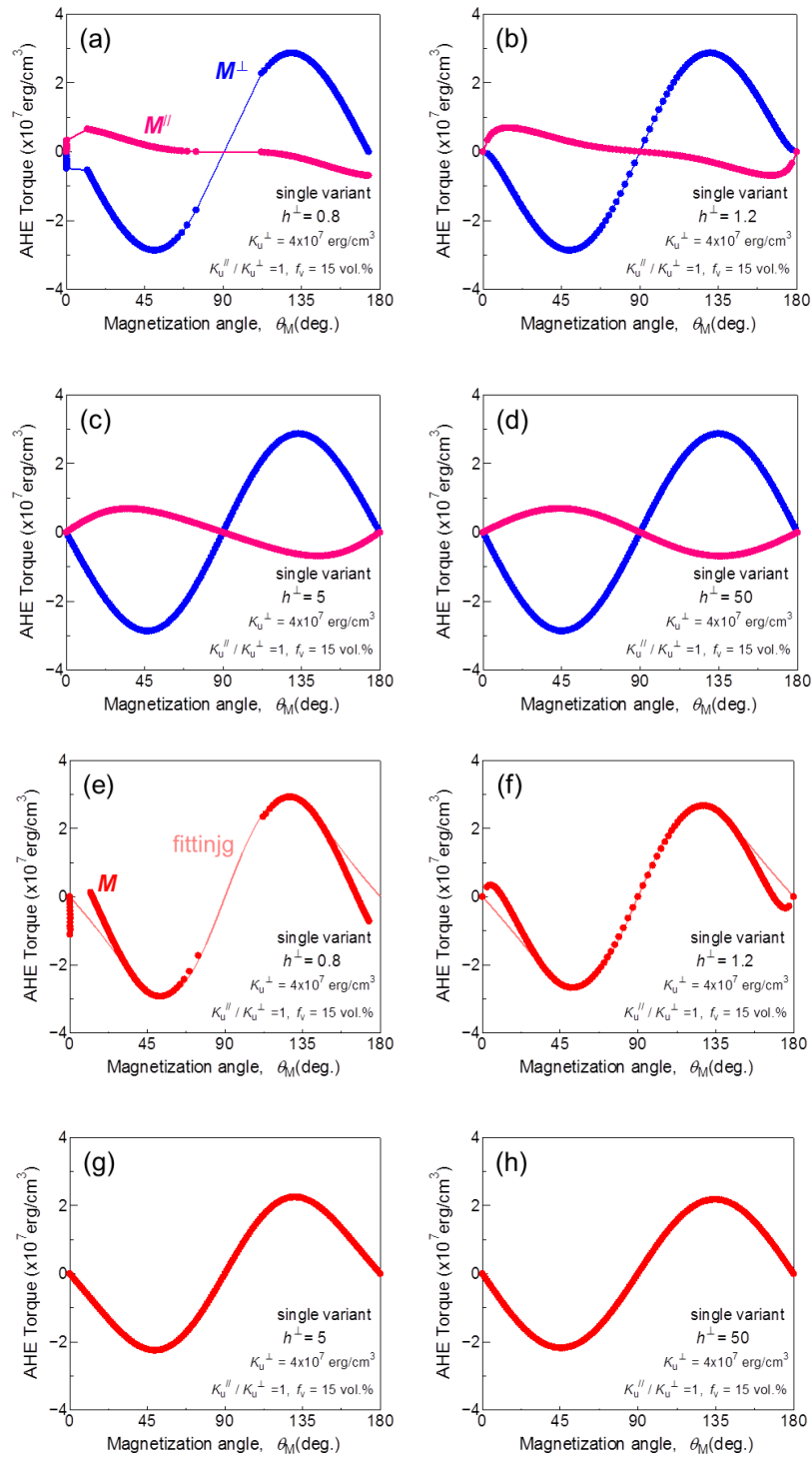


Fig.3.3.5 簡易モデルの計算で得られた AHE トルク波形の規格化印加磁界 h^{\perp} 依存性.

$K_u^{\perp} = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $K_u^{\parallel}/K_u^{\perp} = 1$, $f_v = 15 \text{ vol.}\%$ として計算した.

(a)-(d) 面直規則化成分 M^{\perp} とバリエーション成分 M^{\parallel} の AHE トルク波形.

(e)-(h) 合成磁化 M の AHE トルク波形 (図中の実線は (3.2.3) 式によるフィッティング).

3.4 単結晶，多結晶膜を想定したモデルにおける

AHE トルク波形

実際の FePt 薄膜におけるバリエーションによる AHE トルク波形への影響を検討するため，単結晶膜，多結晶膜を想定したモデル(Fig. 3.4.1)について計算を行った．単結晶膜では，バリエーションの容易軸 e'' は面内方向に 90 度隔てて 2 方向存在しているモデルとした ($n = 2, \Omega = 0, 90 \text{ deg.}$, Fig. 3.4.1(a)). 多結晶膜では， e'' は面内で等方的に存在していると仮定し，対称性から，0-85 度の範囲を 5 度ずつ分割するモデルとした ($n = 18, \Omega = 0-85 \text{ deg.}$, Fig. 3.4.1(b)).

Fig. 3.4.2 に面直規則化成分の一軸磁気異方性を $K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ ，バリエーション成分と面直規則化成分の一軸磁気異方性の比を $K_u''/K_u^\perp = 1$ ，バリエーション存在率を $f_v = 15 \text{ vol. \%}$ として計算した，単結晶膜(Fig.3.4.2(a)-(d))および多結晶膜(Fig.3.4.2(e)-(h))における AHE トルク波形の規格化印加磁界依存性を一例として示す．規格化印加磁界が小さい領域 ($h^\perp < 5$) では単結晶，多結晶膜いずれも $\sin 2\theta$ からの波形の歪がみられた (Fig.3.4.2(b), (c), (f), (g)). 規格化印加磁界が大きいとき ($h^\perp = 50$)，波形の歪は減少した (Fig.3.4.2(d), (h)). 3.5 節では，単結晶膜，多結晶膜を想定したモデルにおける AHE トルク波形について，フーリエ解析を用いて(3.2.3)，(3.2.4)式から一軸磁気異方性定数 K_1 ， K_2 ， K を評価し，① K_u^\perp ，② K_u''/K_u^\perp ，③ f_v ，④ h^\perp に対する依存性を解析した結果を示す．

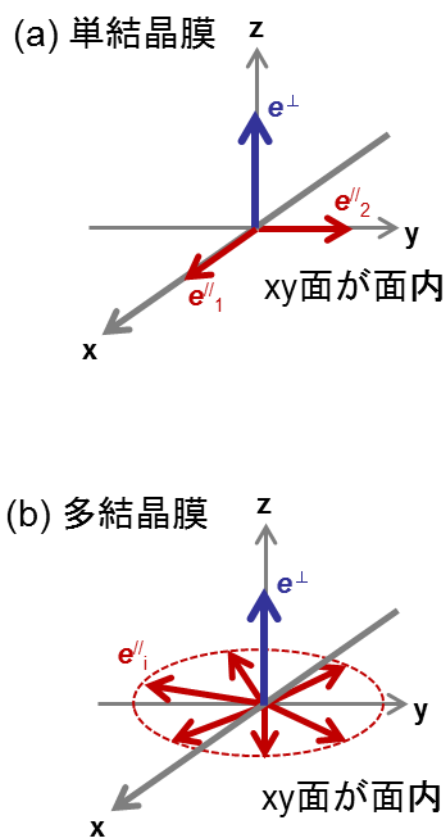


Fig.3.4.1 (a)単結晶膜, (b)多結晶膜を想定した計算モデルの模式図.

単結晶膜ではバリエント成分の磁化容易軸は磁界変化方向(x 軸方向) e^{\parallel}_1 ,

およびこれと 90° なす方向(y 軸方向) e^{\parallel}_2 の 2 成分存在.

多結晶膜ではバリエント成分の磁化容易軸は面内(x-y 平面)で等方的に複数存在.

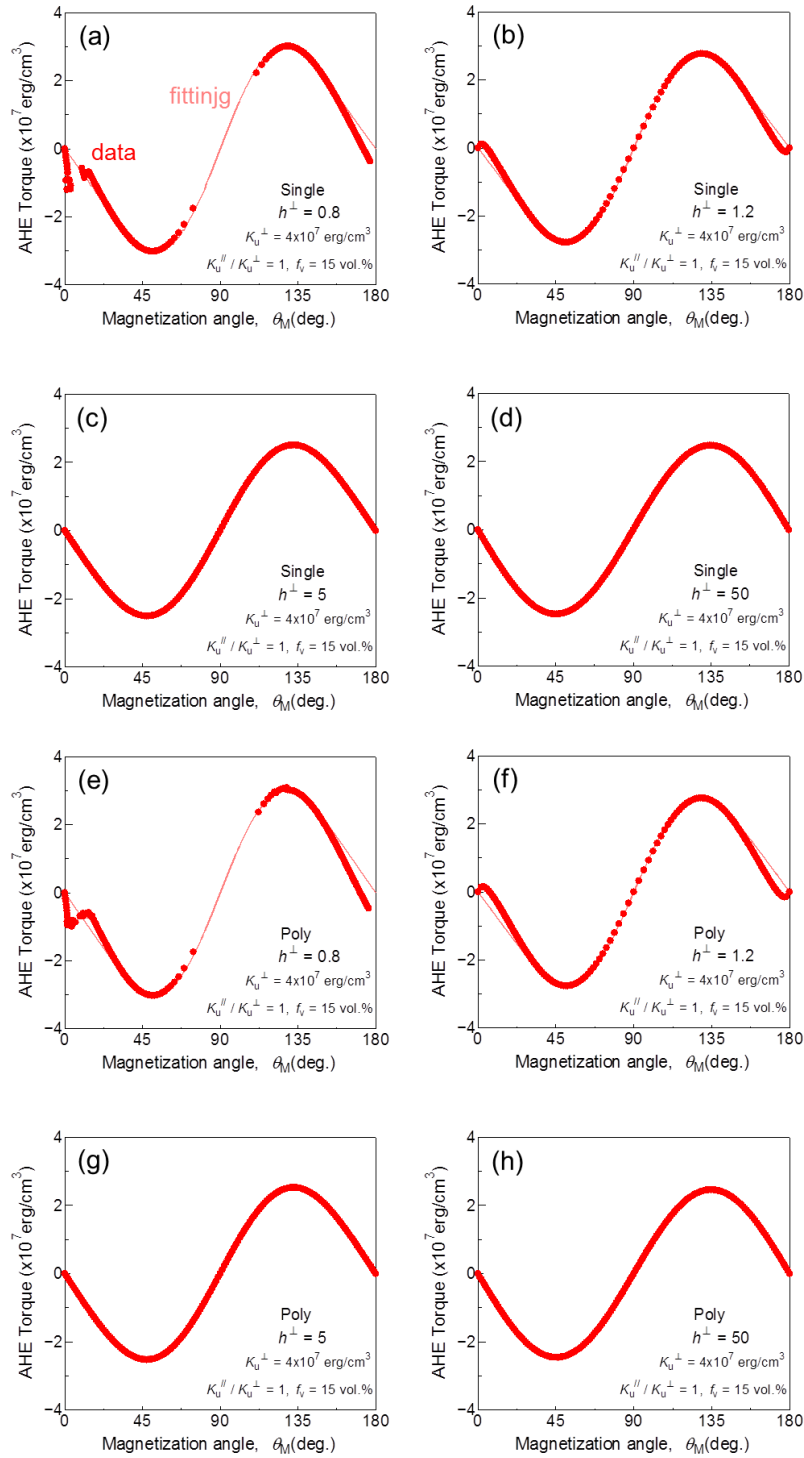


Fig.3.4.2 計算した AHEトルク波形の規格化印加磁界 h^\perp 依存性.

$K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $K_u^\parallel / K_u^\perp = 1$, $f_v = 15 \text{ vol.}\%$ として計算した.

(a)-(d)単結晶膜, (e)-(h)多結晶膜(図中の実線は式(3.2.3)によるフィッティング).

3.5 AHEトルク波形のフーリエ解析によるバリエーション存在率の

定量評価法

本節では、はじめに①一軸磁気異方性 K_u^\perp , ②バリエーション成分と面直規則化成分の一軸磁気異方性の比 $K_u^//K_u^\perp$, ③バリエーション存在率 f_v , ④規格化印加磁界 h^\perp を変化させた場合の AHEトルク波形解析結果をまとめる. 続いて, この結果をもとに, バリエーション存在率の定量評価法について述べる.

まず, $K_u^//K_u^\perp = 1$ の場合について述べる.

Fig. 3.5.1 に $f_v = 5((a),(e)), 10((b),(f)), 15((c),(g)), 20((d),(h))$ vol. % と変化させたときの AHEトルク波形解析により得られた一軸磁気異方性定数 K_1, K_2, K の規格化印加磁界 h^\perp 依存性を一例として示す. なお, $K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $K_u^//K_u^\perp = 1$ として計算した. ここで, 各一軸磁気異方性定数の値は K_u^\perp で規格化している. 単結晶膜(Fig.3.5.1(a)-(d)), 多結晶膜(Fig.3.5.1(e)-(h))いずれも, 規格化印加磁界が小さい領域($h^\perp \leq 20$)では, バリエーションにより K_2 は増大, K_1 は減少している. 一方, 規格化印加磁界が十分大きい領域($h^\perp > 20$)では, K_2 は 0 となり, $K_1 = K$ であることがわかる. このとき, K の大きさは $1.5 \times f_v$ % 程度低下している. K の低下は a)面直規則化成分の存在率の低下(f_v %)と, b)バリエーション成分の約半分($0.5 \times f_v$)の磁化が Fig.3.3.5(d)に示したように磁場回転方向において面直規則化成分と逆位相になり見掛け上の一軸磁気異方性を減少させたことによるものと考えられる. ここまでの結果から, ある特定の磁界 h^\perp で観測された異方性定数 K_1, K_2 の比からバリエーション存在率 f_v を評価できることが期待される. .

まず, 規格化印加磁界 h^\perp の大きさの決定について検討する. これまでの議論では, 面直規則化成分の異方性磁界 H_k^\perp を用いた規格化印加磁界 h^\perp に対する依存性を示した. 実際の AHEトルク波形測定ではバリエーションが混在するため h^\perp は求められない. 測定で得られる規格化磁界 $h(= H/H_k)$, ここで $H_k = 2K/M_s$ と h^\perp の関係は次式で示される.

$$h = h^\perp \times K_u^\perp / K. \quad (3.5.1)$$

Fig.3.5.2 に K/K_u^\perp の h^\perp 依存性を一例として示す. なお, $K_u^\perp = 2, 3, 4, 5, 6, 7 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $K_u^//K_u^\perp = 1$, $f_v = 20$ vol. % として計算した. 単結晶膜(Fig.3.5.2(a)), 多結晶膜(Fig.3.5.2(b))いずれも K/K_u^\perp は K_u^\perp の大きさによらずバリエーション存在率 f_v でほぼ一定に決まることがわかる. (3.5.1)式を用いて, 一軸磁気異方性定数を h に対する依存性に変換することで, 測定結果から直接 h を定められる.

次に, K_2 と K_1 の比について検討する. Fig. 3.5.3 に AHEトルク解析により得られた, 単

結晶膜および多結晶膜における K_2/K_1 の h 依存性を示す. 図には $f_v = 5, 10, 15, 20, 25$ vol. % と変化させ, $K_u^\perp = 2, 3, 4, 5, 6, 7 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ と変化させたときの結果を示す. なお, $K_u^//K_u^\perp = 1$ とした. 単結晶膜(Fig.3.5.3(a)), 多結晶膜(Fig.3.5.3(b))いずれもバリエーションの存在により K_2 は増加した. $L_{10}\text{-FePt}$ の一軸磁気異方性定数は, Sucksmith-Thompson 法[3]を用いた測定により, 一次の項である K_{u1} が支配的であることが知られている[2, 4]. この結果はバリエーション存在率の増加により K_2 は $L_{10}\text{-FePt}$ 本来の K_{u2} より増加することを示している. なお, 計算結果は 3.3 節で述べたようにバリエーションサイズがスピンの交換長よりも大きい場合($L_v > L_{ex}$)のものだが, $L_v < L_{ex}$ の場合も, バリエーションの存在により, 磁化は高次の対称性のエネルギー障壁を感じることで K_2 は増加すると推察される. K_2/K_1 の h 依存性から, K_2/K_1 は f_v により決まり, K_u^\perp にほとんど依存しないことがわかる. $h < 2$ の領域においては反磁界のやスイッチングの影響を含むため概算した結果であり, ばらつきが生じている. なお, 低 h 領域においては, K_u^\perp の低下にともない K_2/K_1 は減少する傾向がみられる. これは, 反磁界の影響が増大することで, 面直規則化成分とバリエーション成分のトルク波形の位相差が極端に大きくなったためである. ここまでの結果から, 単結晶膜, 多結晶膜いずれも AHE トルク波形を解析することでバリエーション存在率 f_v を評価できると考えられる.

最後に, $K_u^//K_u^\perp$ の大きさがバリエーションの存在率評価に与える影響を検討する.

Fig.3.5.4 に $K_u^//K_u^\perp = 0.5, 1$ としたときの単結晶膜における K_2/K_1 の h 依存性を示す. 図には $K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $f_v = 5, 10, 15, 20, 25$ vol. % としたときの一例を示している. K_2/K_1 と h が同じ値でも, $K_u^//K_u^\perp$ が小さい場合 f_v は大きく見積もられることがわかる. Fig.3.5.5 に f_v の $K_u^//K_u^\perp$ に対する依存性を示す. 図には $K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $h = 1.5$, $K_2/K_1 = 0.05, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$ とした一例を示している. $K_u^//K_u^\perp$ の低下により f_v の値は大きく見積もられるが, 単純な比例関係ではない. 例えば, $K_u^//K_u^\perp$ を 1 から 0.2 に低下した場合でも, f_v は最大で 45 % 増加に留まっている. $K_u^//K_u^\perp$ の解析誤差は f_v 値に大きな差は与えないことがわかる.

以上の検討結果から, 以下のバリエーション存在率 f_v の評価法を提案した.

1. 実験により一軸磁気異方性定数 K_1, K_2 を測定し, $L_{10}\text{-FePt}$ 本来の K_{u2} を差し引いた, $(K_2 - K_{u2})/K_1$ の規格化印加磁界 h 依存性を解析する.
2. 他の測定などにより推定した $K_u^//K_u^\perp$ を用いて, 理論的な計算結果と $(K_2 - K_{u2})/K_1$ の h 依存性を比較することで, f_v を定量評価する.

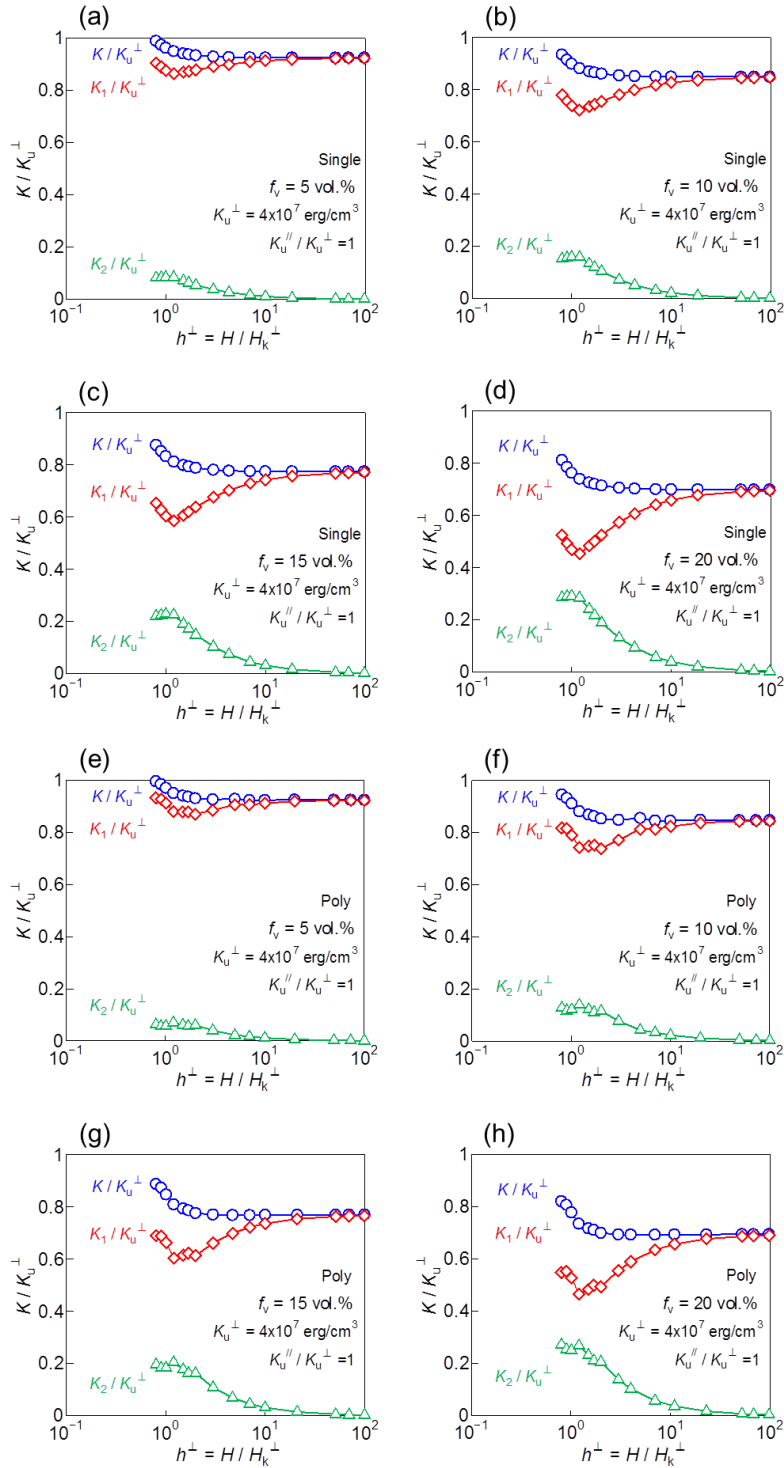


Fig.3.5.1 一軸磁気異方性定数 K (○), K_1 (◇), K_2 (△)の規格化印加磁界 h^\perp 依存性.

各値は面直規則化成分の一軸磁気異方性 K_u^\perp で規格化している.

$K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $K_u^\parallel/K_u^\perp = 1$, $f_v =$ (a),(e)5, (b),(f)10, (c),(g)15, (d),(h)20 vol.%として計算した. (a)-(d)単結晶膜, (e)-(h)多結晶膜.

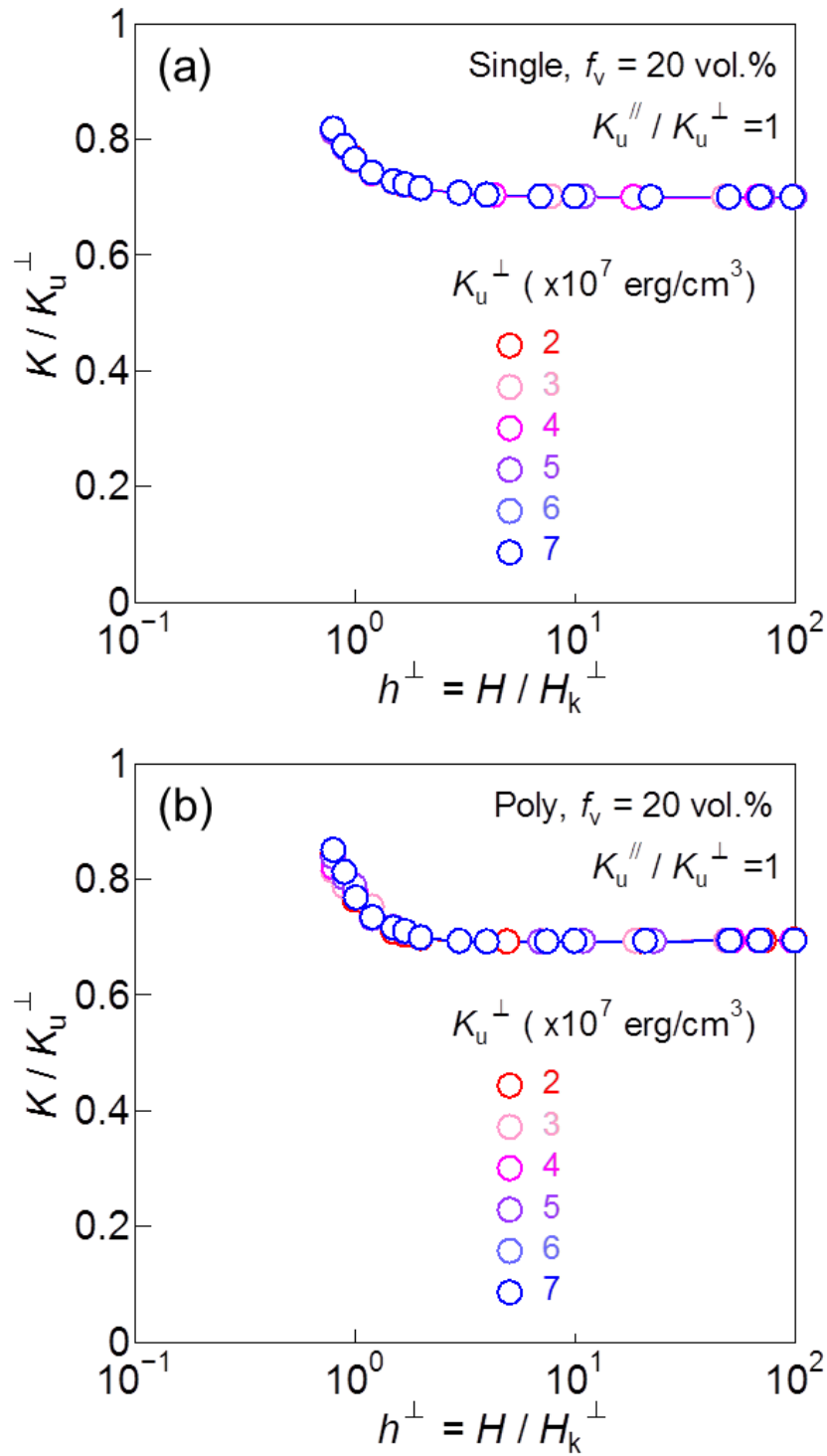
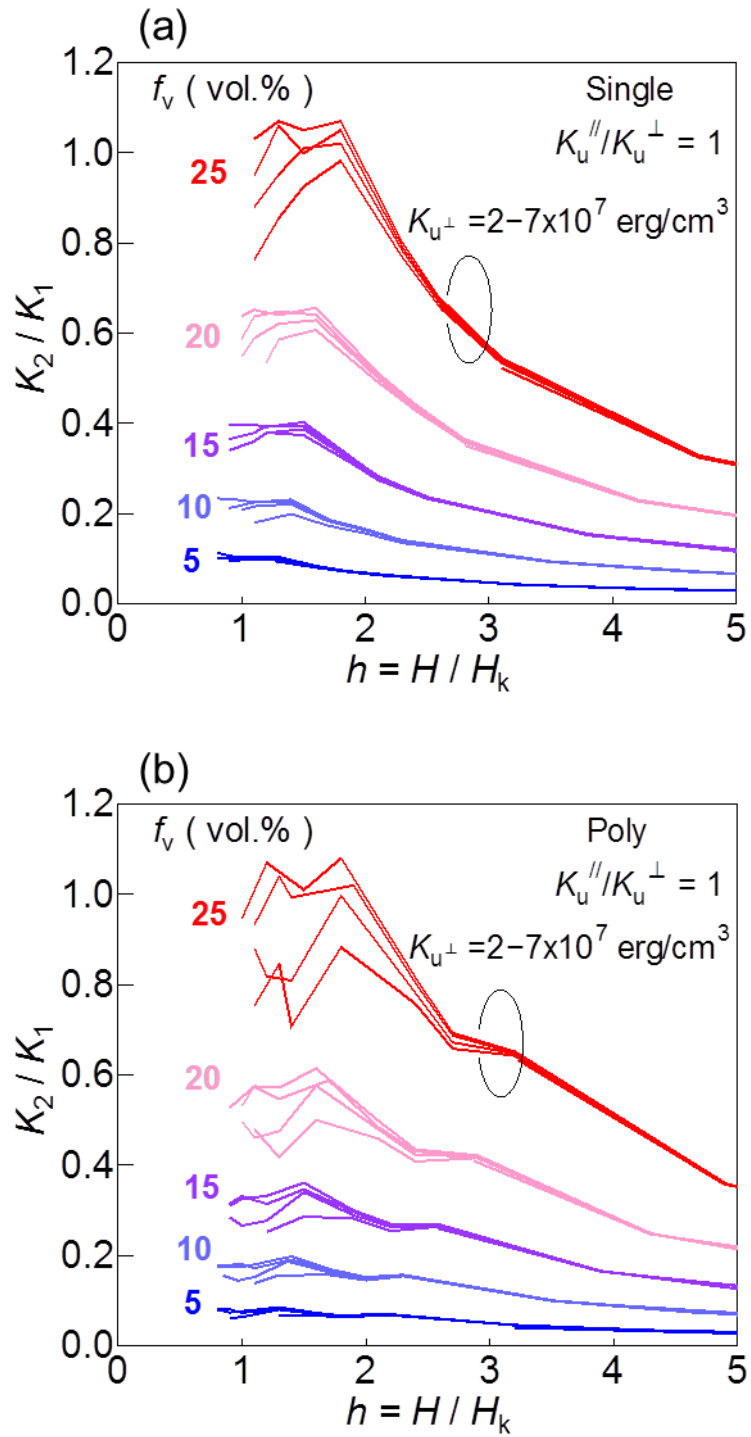


Fig.3.5.2 K/K_u^\perp の規格化印加磁界 h^\perp 依存性. (a)単結晶膜, (b)多結晶膜.
 $K_u^\perp = 2, 3, 4, 5, 6, 7 \times 10^7$ erg/cm³, $K_u^\parallel/K_u^\perp = 1$, $f_v = 20$ vol.%として計算した.

Fig.3.5.3 K_2/K_1 の h 依存性. (a) 単結晶膜, (b) 多結晶膜.

$K_u^{\perp} = 2, 3, 4, 5, 6, 7 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $K_u^{\parallel}/K_u^{\perp} = 1$, $f_v = 5, 10, 15, 20 \text{ vol.}\%$ として計算した.

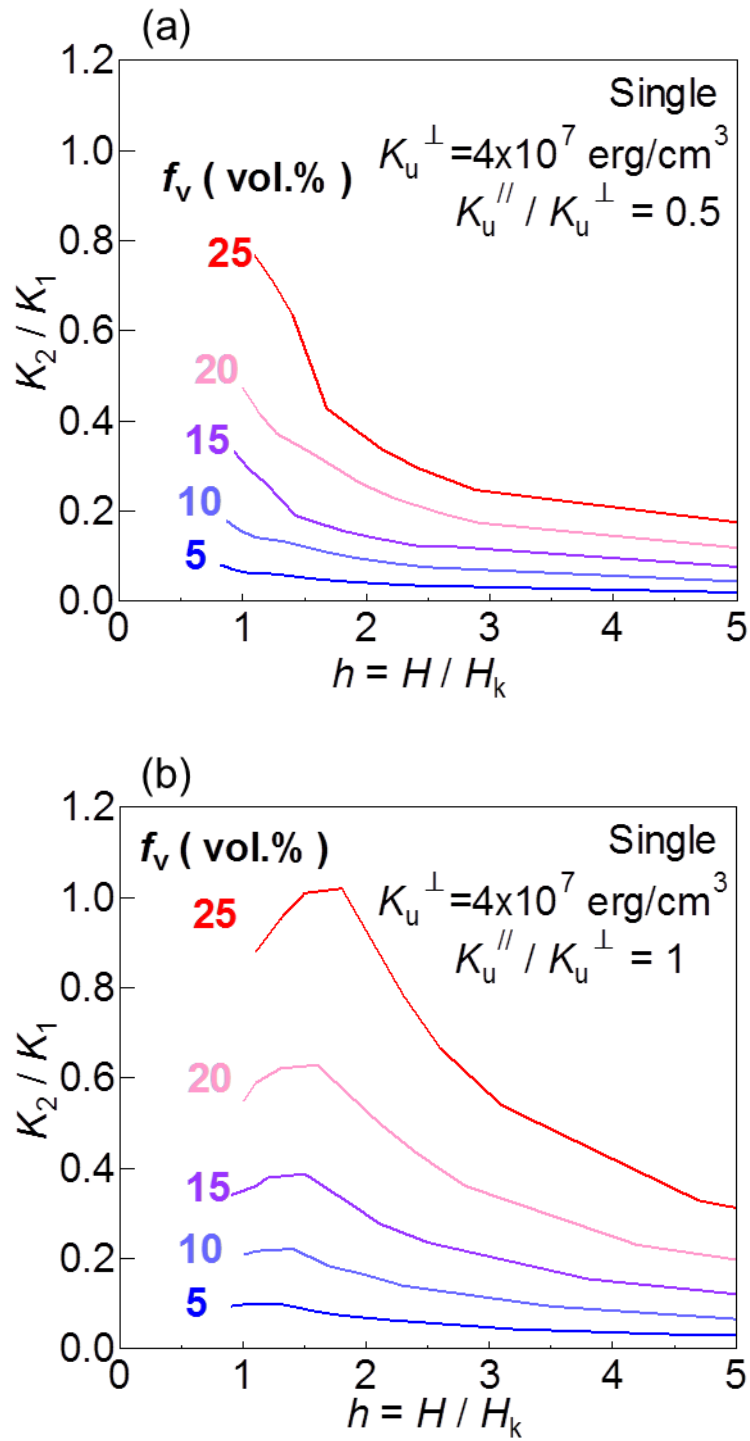


Fig.3.5.4 K_2/K_1 の h 依存性(単結晶膜). $K_u^\parallel / K_u^\perp =$ (a) 0.5, (b) 1.

$K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $f_v = 5, 10, 15, 20 \text{ vol.}\%$ として計算した.

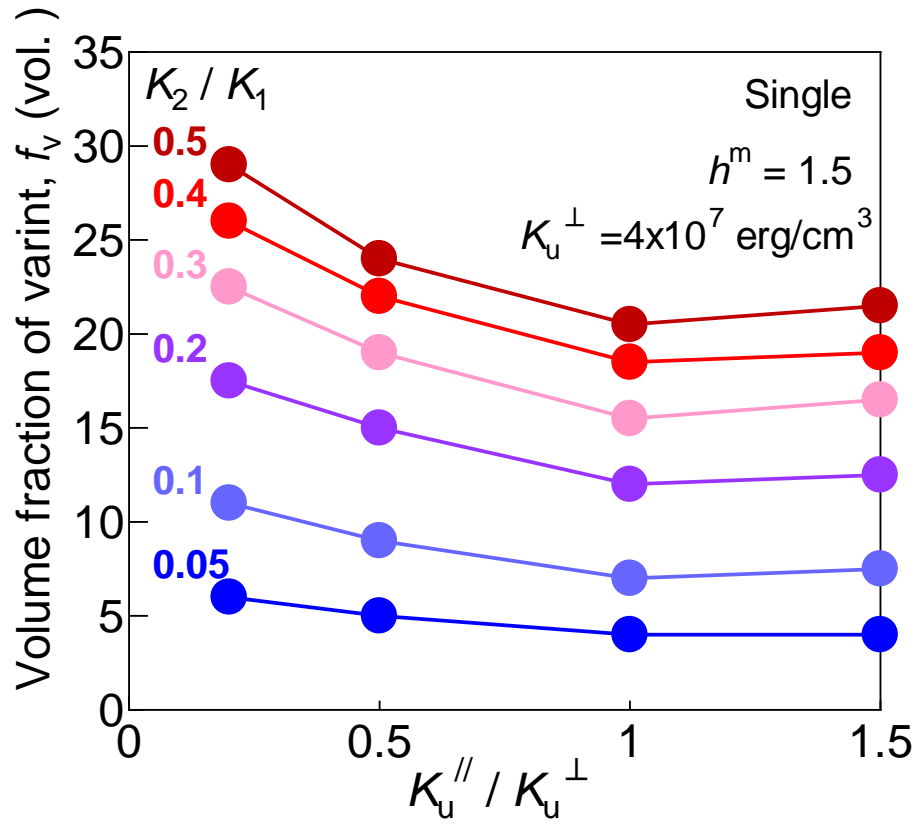


Fig.3.5.5 $K_u^// / K_u^\perp$ の値による f_v 評価値の変化(単結晶膜).

図中は $K_2/K_1 = 0.05, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$ の場合の結果を示す.

$K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $h = 1.5$ として計算した.

3.6 結言

本章では、AHEトルク波形のフーリエ解析を行い、バリエーション存在率 f_v の定量評価法を提案した。

本評価法は Stoner-Wohlfarth モデルを用いて解析した結果をもとにしており、バリエーションサイズがスピンの交換長よりも大きい場合に適用可能である。

フーリエ解析結果から、面直規則化成分とバリエーション成分の磁界の回転に対する磁気トルクの位相の違いにより、AHEトルク波形にひずみが生じる。これにより、解析で得られる一軸磁気異方性定数 K_2 は FePt 本来の K_{u2} より増加することが明らかになった。さらに、AHEトルク波形解析で得られる K_2 と K_1 の比の規格化印加磁界 h 依存性は面直規則化成分の一軸磁気異方性 K_u^\perp の大きさにほとんど依存せず、主にバリエーション存在率 f_v に依存して決まることを解明した。なお、 $K_u^{\parallel}/K_u^\perp$ の解析誤差は f_v の評価値に大きな差は与えないことがわかった。

以上の検討結果から、以下のバリエーション存在率評価法を提案した。

1. 実験により一軸磁気異方性定数 K_1 , K_2 を測定し、FePt 本来の K_{u2} を差し引いた、 $(K_2 - K_{u2})/K_1$ の規格化印加磁界 h 依存性を解析する。
2. 他の測定などにより推定した $K_u^{\parallel}/K_u^\perp$ を用いて、理論的な計算結果と $(K_2 - K_{u2})/K_1$ の h 依存性を比較することで、 f_v を定量評価する。

参考文献

- [1] 例えば, 近角聡信 “ 強磁性体の物理 (下) ” 第 5 章
- [2] S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, T. Miyazaki, Y. Shimada, and K. Fukamichi, *PRB*, **66**, 024413 (2002).
- [3] W. Sucksmith and J. E. Thompson, *Proc. Roy. Soc.*, **A225**, 362(1954).
- [4] K. Inoue, H. Shima, A. Fujita, K. Ishida, K. Oikawa, and K. Fukamichi, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 102503(2006).

第 4 章

バリエント形成と AHE トルク解析による バリエント存在率の定量評価

4.1 緒言

第 3 章では理論的な K_2/K_1 の印加磁界依存性と測定結果と比較することによる、バリエント存在率 f_v の定量評価手法を提案した。

本章では標準的な条件で成膜した $L1_0$ -FePt 多結晶膜および単結晶膜において第 3 章で提案した AHE トルク波形解析を適用し、バリエント存在率を定量的に解析することを目的とした。

$L1_0$ -FePt 多結晶膜と単結晶膜はいずれも基板温度 $T_s = 400^\circ\text{C}$ 、膜厚 $d = 10\text{ nm}$ で作製した。4.2 節では試料の磁気特性および基本構造を述べる。4.3 節では試料におけるバリエントの形成過程および構造解析を行った結果を述べる。4.4 節では、まず AHE トルク解析により一軸磁気異方性定数を評価し、4.3 節の結果を踏まえてバリエント評価モデルが適用可能かを検討し、最後に f_v の定量評価結果を述べる。4.5 節は結言である。

4.2 磁気特性および基本構造

Fig. 4. 2. 1 に基板温度 $T_s = 400\text{ }^{\circ}\text{C}$ で作製した, 膜厚 $d = 10\text{ nm}$ の $L1_0$ -FePt 単結晶膜および多結晶膜の磁化曲線を示す. いずれの薄膜も面直方向に磁化容易軸を有し, 面直方向に規則化していることがわかる. 飽和磁化 $M_s \cong 1000\text{ emu/cm}^3$ である.

Fig. 4.2.2, Fig. 4.2.3 に面直および面内方向の XRD プロファイルを示す. 単結晶膜, 多結晶膜いずれも, 面直 XRD で FePt(001)面に由来する回折ピークのみが観察された. これは $L1_0$ -FePt の c 軸が面直方向にエピタキシャル成長していることを示している. FePt(001)と FePt(002)のピーク強度比から評価した長距離規則度は単結晶膜で $S = 0.8$, 多結晶膜で $S = 0.87$ とわかった. 面内方向 XRD においても, 単結晶膜, 多結晶膜いずれも $L1_0$ -FePt の面直方向への c 軸配向に対応する FePt(200)面の強い回折ピークが観察された. 多結晶膜においては, 面直規則化成分の規則線である FePt(110)面に対応する回折ピークも観察された. ただし, 単結晶膜, 多結晶膜いずれもバリアント成分の規則線である FePt(001)面の回折ピークも観察されている. 多結晶膜において, FePt(110),(200),(220)面の回折ピークから Williamson-Hall plot[1]を用いて算出した結晶子サイズは $D = 14.8\text{ nm}$ とわかった. Fig. 4.2.4 に SEM 像を示す. 単結晶膜, 多結晶膜いずれにおいても粒子が合体成長した迷路状構造を有することがわかる.

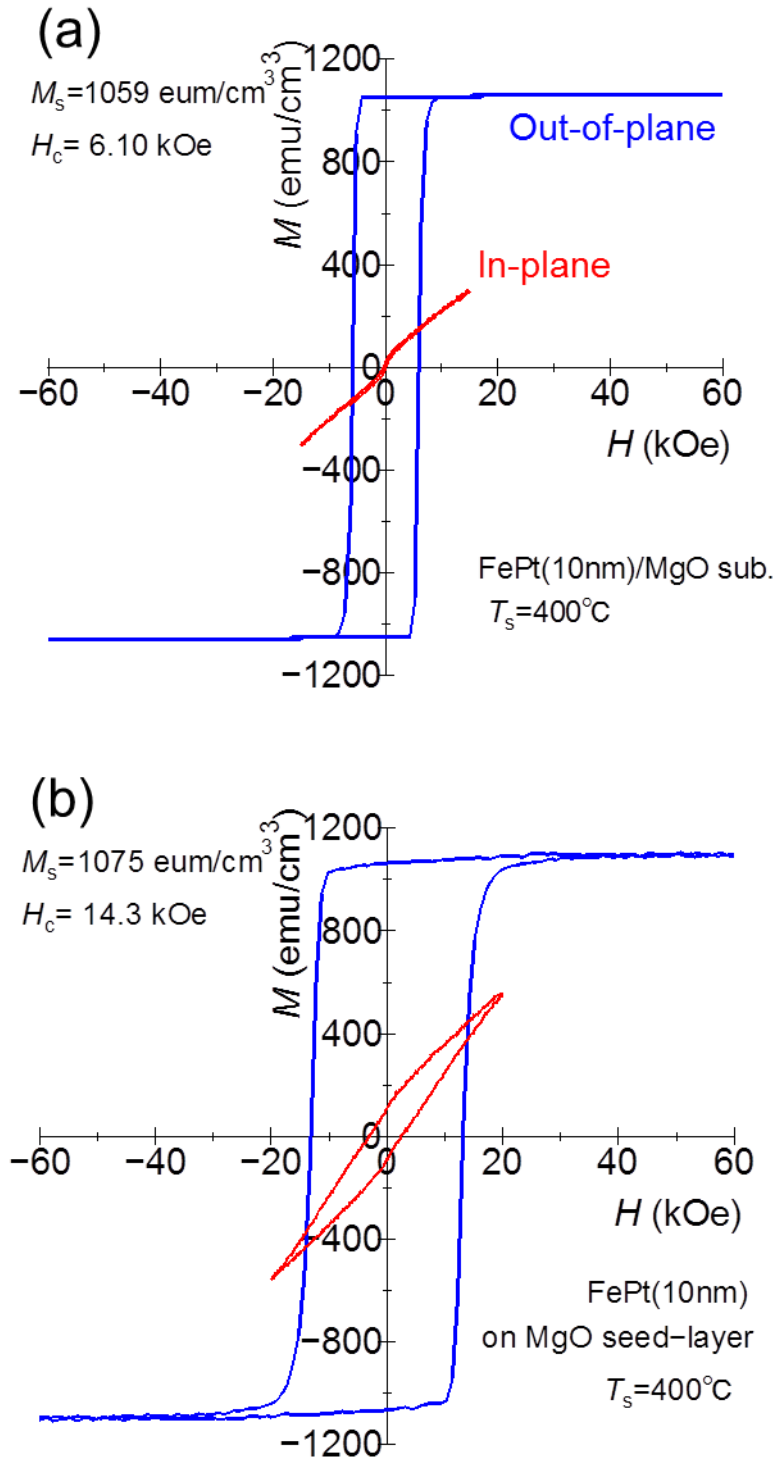


Fig. 4.2.1 基板温度 400°C で形成した $L1_0$ -FePt 薄膜(膜厚 10 nm)の磁化曲線.

(a)単結晶膜, (b)多結晶膜.

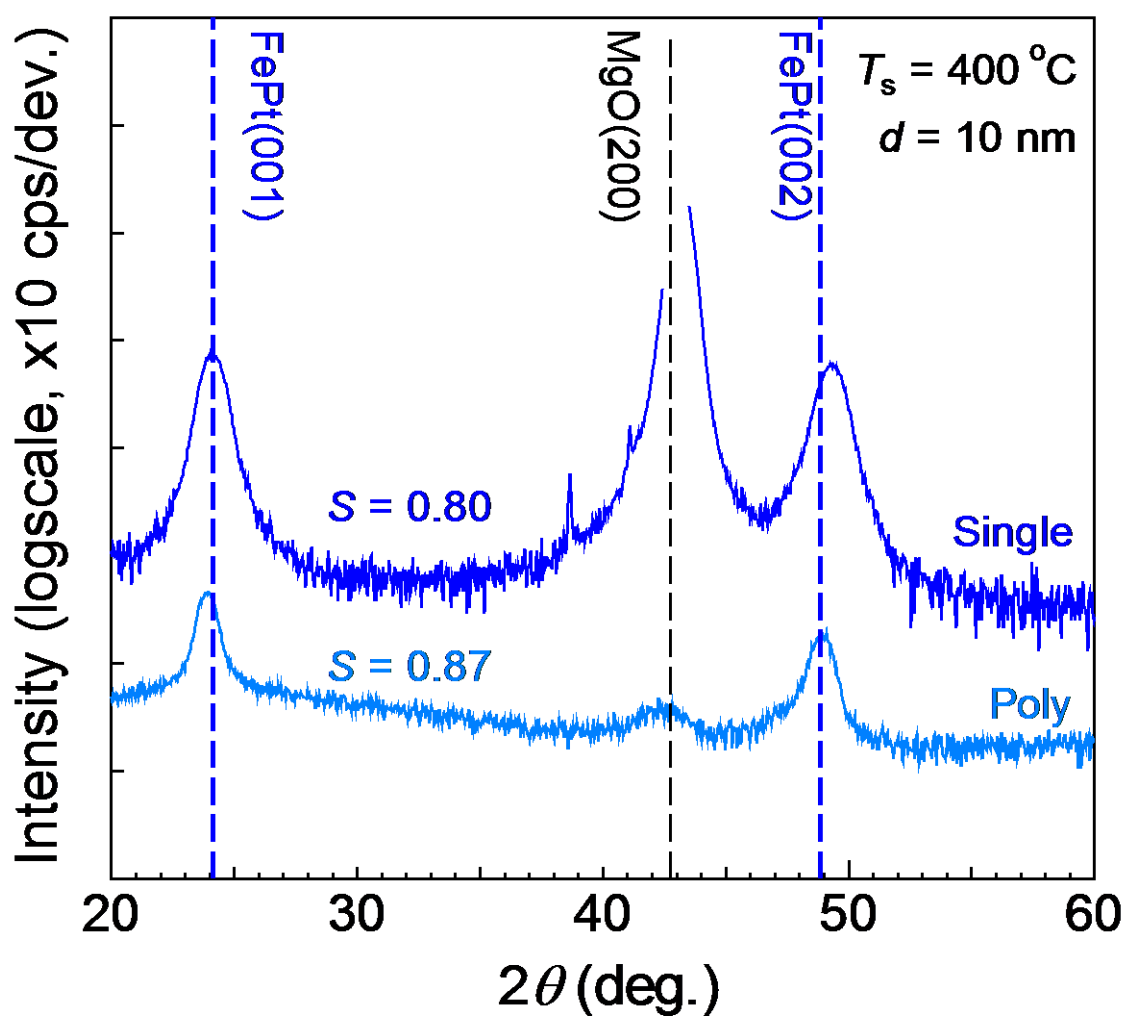


Fig. 4.2.2 基板温度 400°Cで形成した $L1_0$ -FePt 単結晶膜, 多結晶膜(膜厚 10 nm)の面直 XRD パターン. 図中には FePt(001), (002) のピーク強度比から評価した長距離規則度 S を記載した.

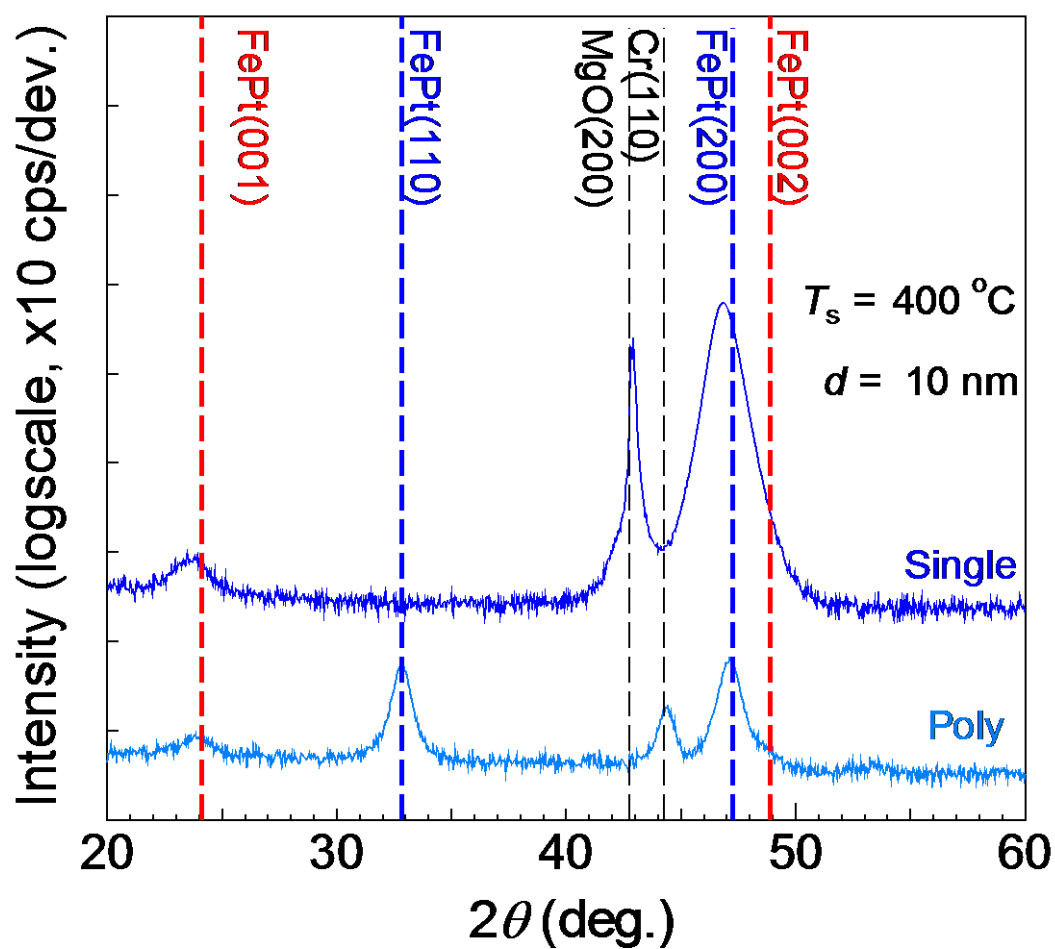


Fig. 4.2.3 基板温度 400°C で形成した $L1_0$ -FePt 単結晶膜, 多結晶膜(膜厚 10 nm)の面内 XRD パターン.

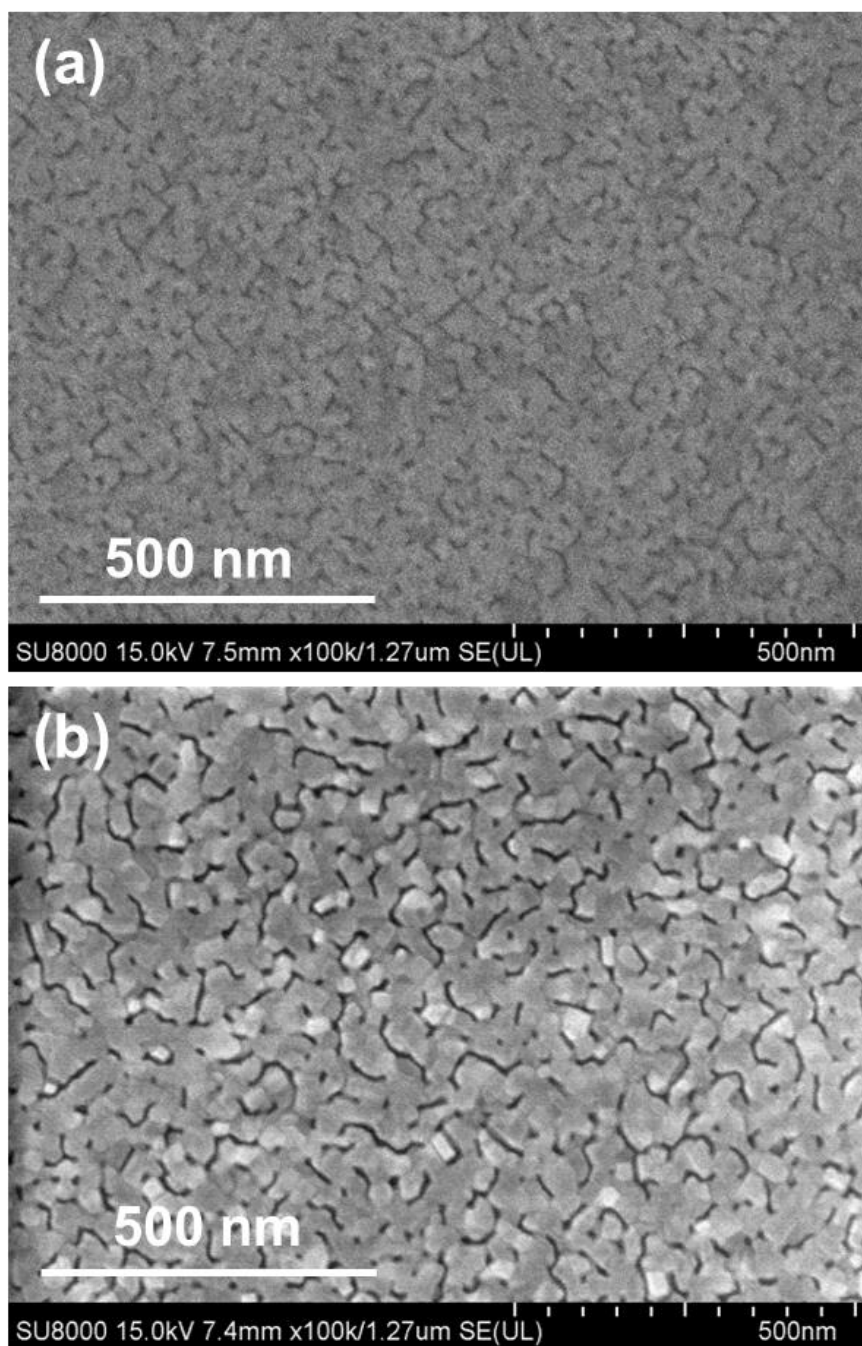


Fig. 4.2.4 基板温度 400°Cで形成した $L1_0$ -FePt 薄膜(膜厚 10 nm)の平面形状.
(a)単結晶膜, (b)多結晶膜.

4.3 バリアントの構造解析

バリアントの構造に関する知見を得るため、FePt 層および下地の MgO 層に着目し(Fig. 4.3.1(a)), 平面透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope, TEM)を用いて観察を行った。まず, XRD 測定でバリアントの形成が顕著にみられた, 基板温度 $T_s = 480^\circ\text{C}$ で形成した $L1_0$ -FePt 多結晶膜を基に議論を行う。Fig.4.3.1 に $L1_0$ -FePt 多結晶膜の(b)平面 TEM 像および(c) 同画像の高速フーリエ変換(Fast Fourier Transform, FFT)像を示す。平面 TEM 像の中心付近において, FePt の規則化に対応した格子縞が観察されており, バリアントが形成されていることがわかる。FFT 像から, FePt 層については, 面直規則化成分に対応する FePt(110)および(200), バリアント成分に対応する FePt(001)のスポットが観察された。一方, MgO 層については, MgO(200)に対応するスポットのみが観察された。

各スポットに対応する領域の関係を検討するため, 逆フーリエ変換(Inverse FFT, IFFT)を行った。Fig.4.3.2 に(a)MgO 層, (b)FePt 層および(c)MgO 層とバリアントに着目した IFFT 像を示す。MgO 層は面内方向の方位が異なる3つの領域 MgO(200)①, ②, ③がみられる(Fig.4.3.2(a))。下地の MgO 層に対して FePt の面直規則化成分の領域 FePt(110), (200)①, ②は概ね対応している(Fig.4.3.2(b))。このことから, 面直方向に規則化した FePt は基本的に MgO 結晶粒上に1~複数個成長していると考えられる。ただし, FePt(200)①上部のように MgO 粒界をまたいで成長する FePt もみられる。一方, バリアントは MgO 結晶粒をまたがるように形成されている(Fig.4.3.2(c))。これは MgO 粒界を超えて成長する FePt 粒子の一部がバリアントを形成することを示唆している。このようなバリアント形成は高濃度 Fe 組成での先行報告と一致している[2]。

TEM 像の解析結果から推察したバリアント形成メカニズムの模式図を Fig.4.3.3 に示す。①膜形成初期段階において, FePt は下地層の MgO とエピタキシャル性を持って核形成される。②MgO 粒界を超えて FePt 粒が二次元成長する。このとき, MgO 層とのエピタキシャル性のない領域を含む FePt 粒が形成される。同領域は下地層からの拘束がないため面直方向への規則化の優先性を失い, 面直または面内方向に規則化する。③下地層とのエピタキシャル性のない領域を含んだ FePt 粒の一部がバリアントを形成すると推察される。

上述のバリアント形成モデルでは, 粒界の無い単結晶基板上に形成した $L1_0$ -FePt 単結晶膜のバリアント形成を説明できない。単結晶膜についても同様に FePt 層と MgO(100)単結晶基板に着目して TEM 観察を行い, FFT を用いて解析を行った。

Fig.4.3.4 に基板温度 400 °C で形成した $L1_0$ -FePt 単結晶膜の(a)平面 TEM 像, (b)FFT 像および(c)-(e)IFFT 像をまとめた. Fig.4.3.4(b)に示す FFT 像から, FePt 層は, 面直規則化成分に対応する FePt(110), (200)とバリエント成分に対応する FePt(001)のスポット, MgO は, MgO(200)に対応するスポットのみが確認できる. 各スポットの対称性から, FePt 単結晶膜が MgO 上にエピタキシャル成長していることがわかる. MgO のスポットに関する IFFT 像(Fig.4.3.4(c))では, 右下の範囲において格子縞のない領域がみられた. これは, 基板表面の不純物(水分[3], 炭酸塩[4]など)の吸着などによる結晶性の悪化に対応していると考えられる. 一方, FePt 層の IFFT 像(Fig.4.3.4(d))では, 面直規則化成分 FePt(110), (200)の領域は全体に見られ, バリエント成分 FePt(001)の領域は中央付近に観察された. ここで, バリエントと MgO の関係に着目すると(Fig.4.3.4(e)), バリエント成分は MgO の格子縞がみられない領域をまたいで形成されていることがわかる. 以上の結果から, $L1_0$ -FePt 単結晶膜では単結晶基板表面の結晶性の悪化がバリエント形成の要因の一つであると考えられる.

次に, バリエントサイズを評価するため, TEM 像の FFT 解析からバリエントに対応するスポット(FePt(001))の IFFTを行った. Fig.4.3.5, Fig.4.3.6に基板温度 480 °C, 400 °C で形成した多結晶膜, 基板温度 400 °C で形成した単結晶膜におけるバリエントサイズの解析結果をそれぞれ示す. Fig.4.3.5(a), (b), Fig.4.3.6(a)において, 赤で示された領域がバリエント粒に対応している. いずれの像においても, バリエントは細かく多数分布していることがわかる. 粒径分布解析により, 多結晶膜におけるバリエントの粒径は 5-18 nm に分布していることがわかった(Fig.4.3.5(c)). ここで, 分布の中央値をバリエントサイズ L_v とすると, 基板温度 480 °C において $L_v = 10.1$ nm, 400 °C において $L_v = 9.8$ nm である. 一方, 単結晶膜において, バリエントの粒径はほとんどが 3-7 nm に分布しており, バリエントサイズは $L_v = 4.42$ nm と分かった(Fig.4.3.6(b)).

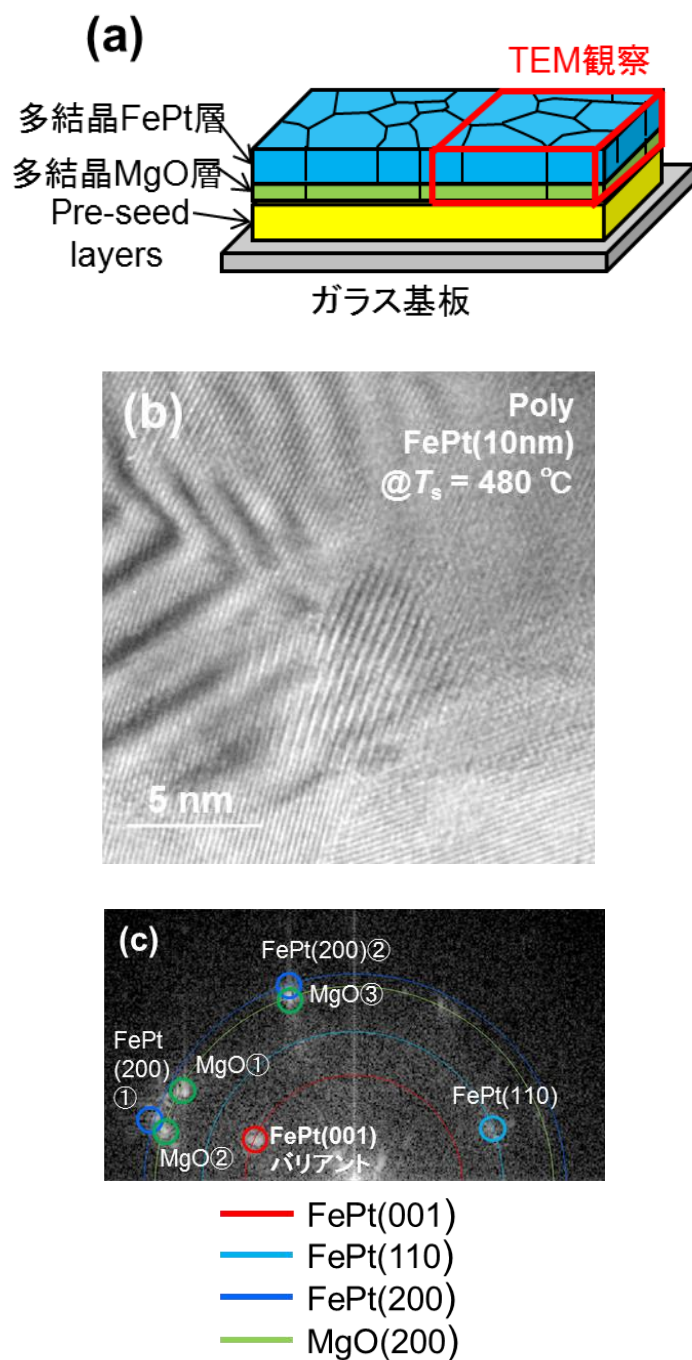


Fig.4.3.1 基板温度 480°C で形成した $L1_0$ -FePt 多結晶膜(膜厚 10 nm)の平面 TEM 観察結果. (a)観察領域の模式図, (b)平面 TEM 像, (c)TEM 像の FFT 解析結果.

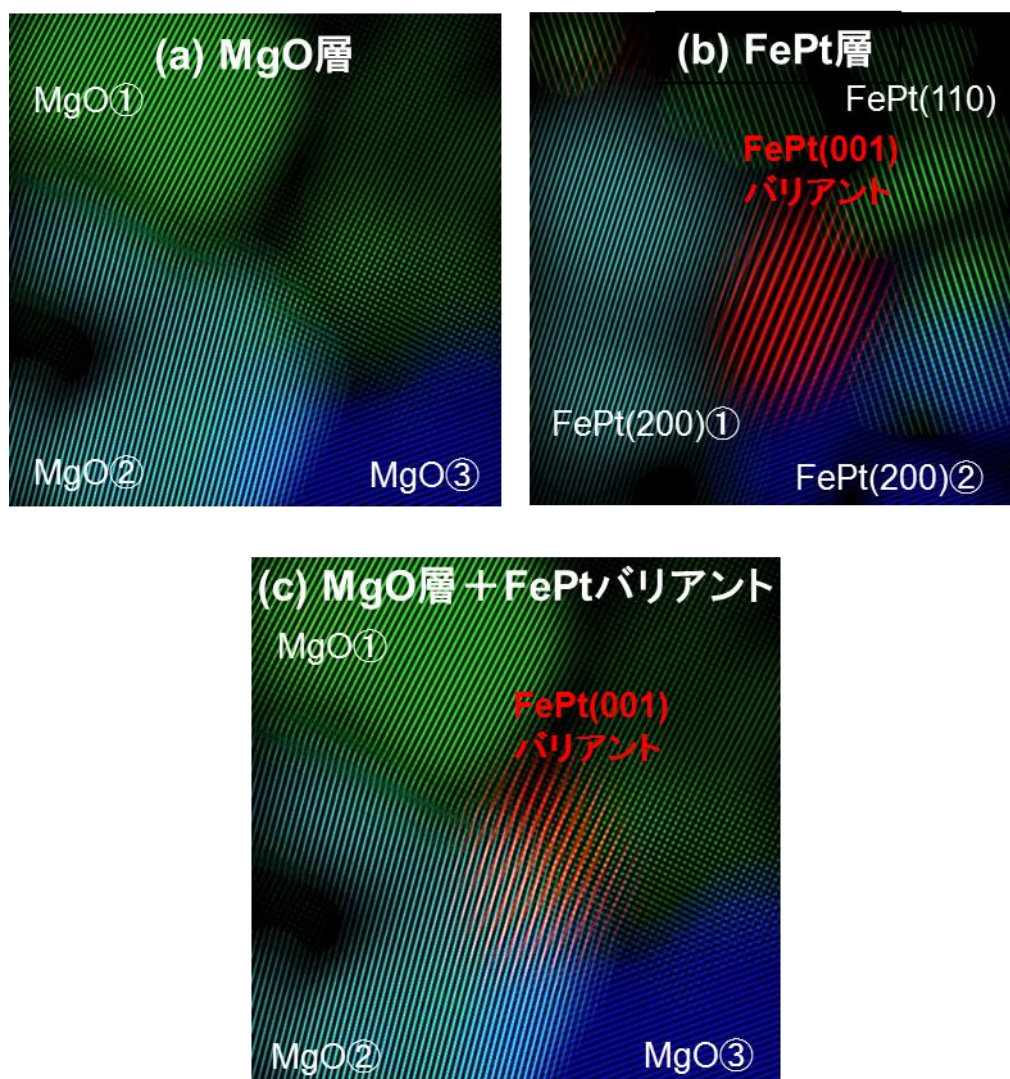


Fig. 4.3.2 TEM 像の IFFT 結果.

(a)MgO 層, (b)FePt 層, (c)MgO 層+FePt バリアント.

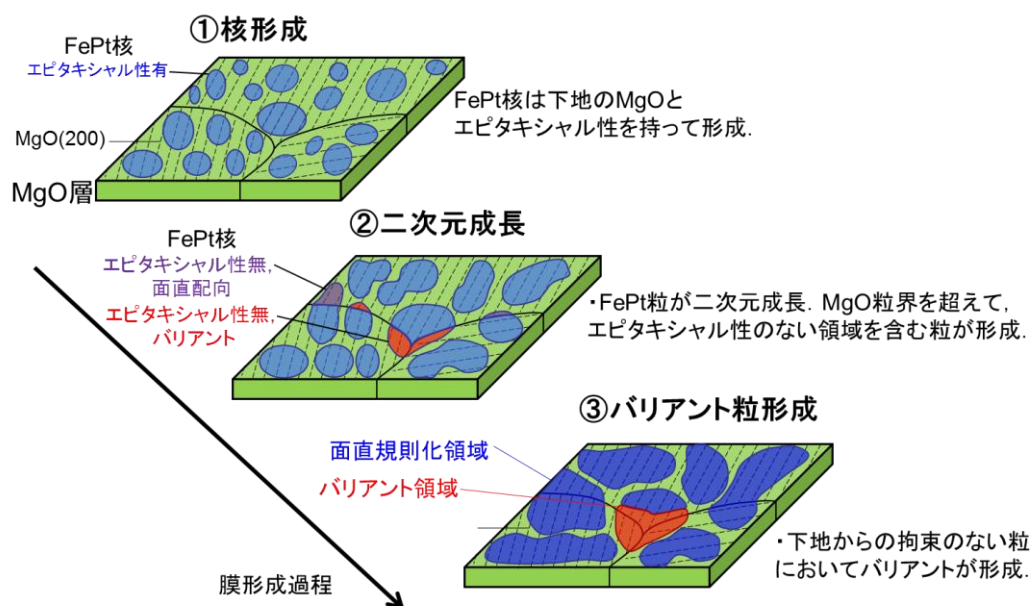


Fig.4.3.3 多結晶膜におけるバリエント形成メカニズムの模式図.

①FePt の核形成, ②FePt 粒子の 2 次元成長, ③バリエント粒の形成

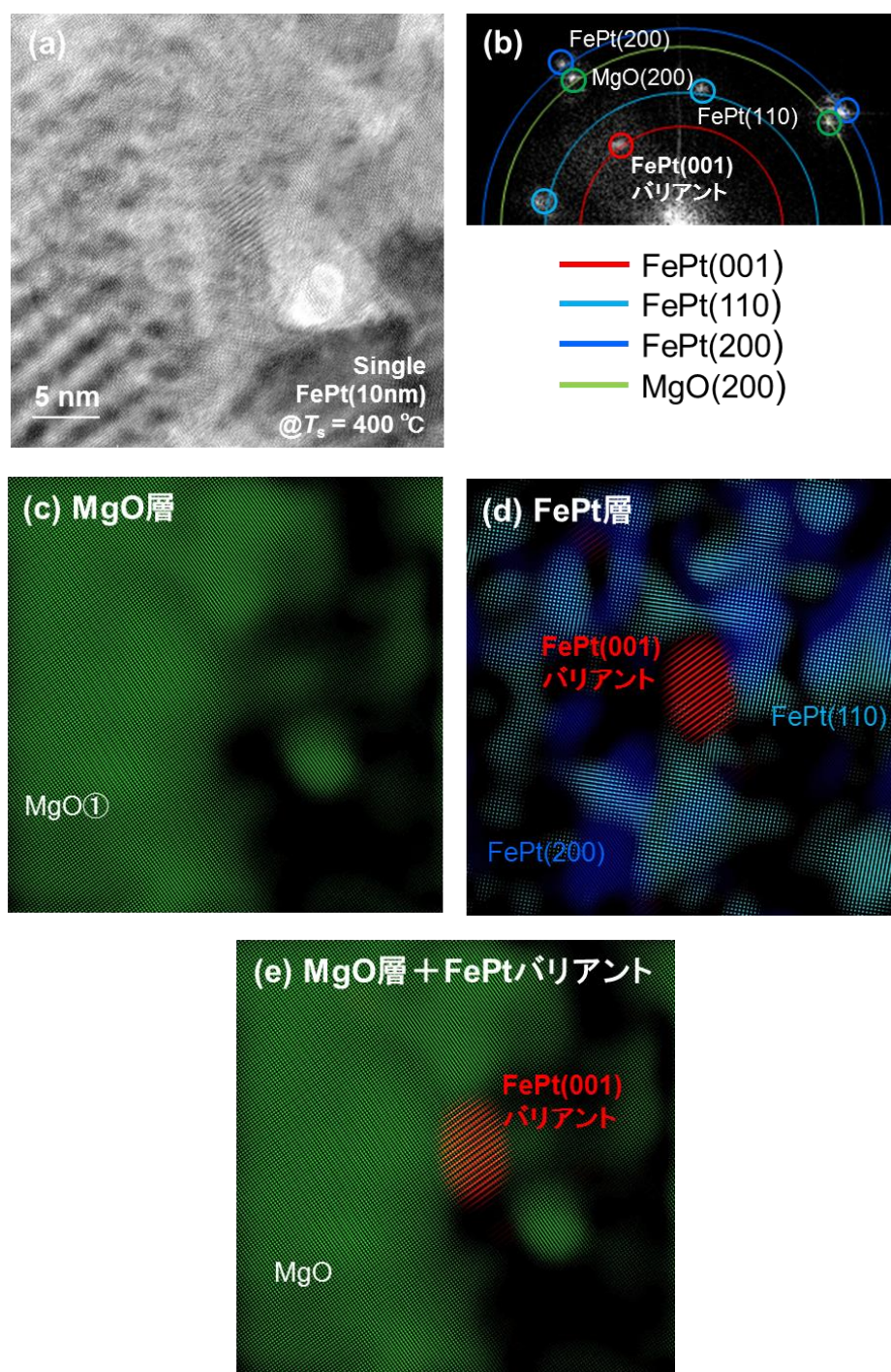


Fig. 4.3.4 基板温度 400 °C で形成した $L1_0$ -FePt 単結晶膜の FFT 解析結果.
(a) 平面 TEM 像, (b) FFT 像, IFFT 像 (c) MgO 層, (d) FePt 層, (e) MgO 層 + FePt バリアント.

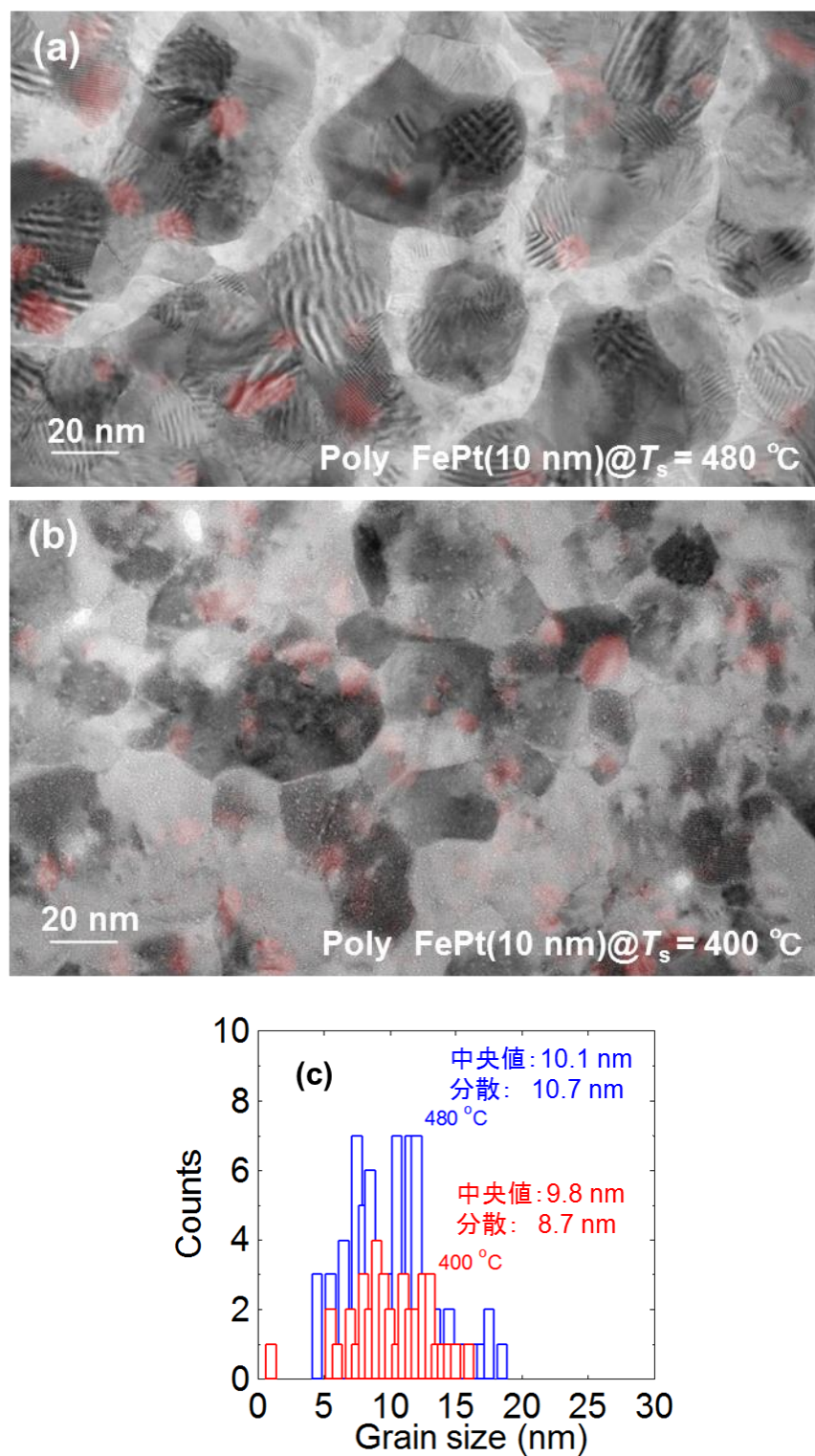


Fig.4.3.5 多結晶膜におけるバリエントサイズ評価結果.
基板温度(a)480, (b)400℃で形成した $L1_0$ -FePt 多結晶膜(膜厚 10 nm)
の平面 TEM 像. (c)粒径分布.

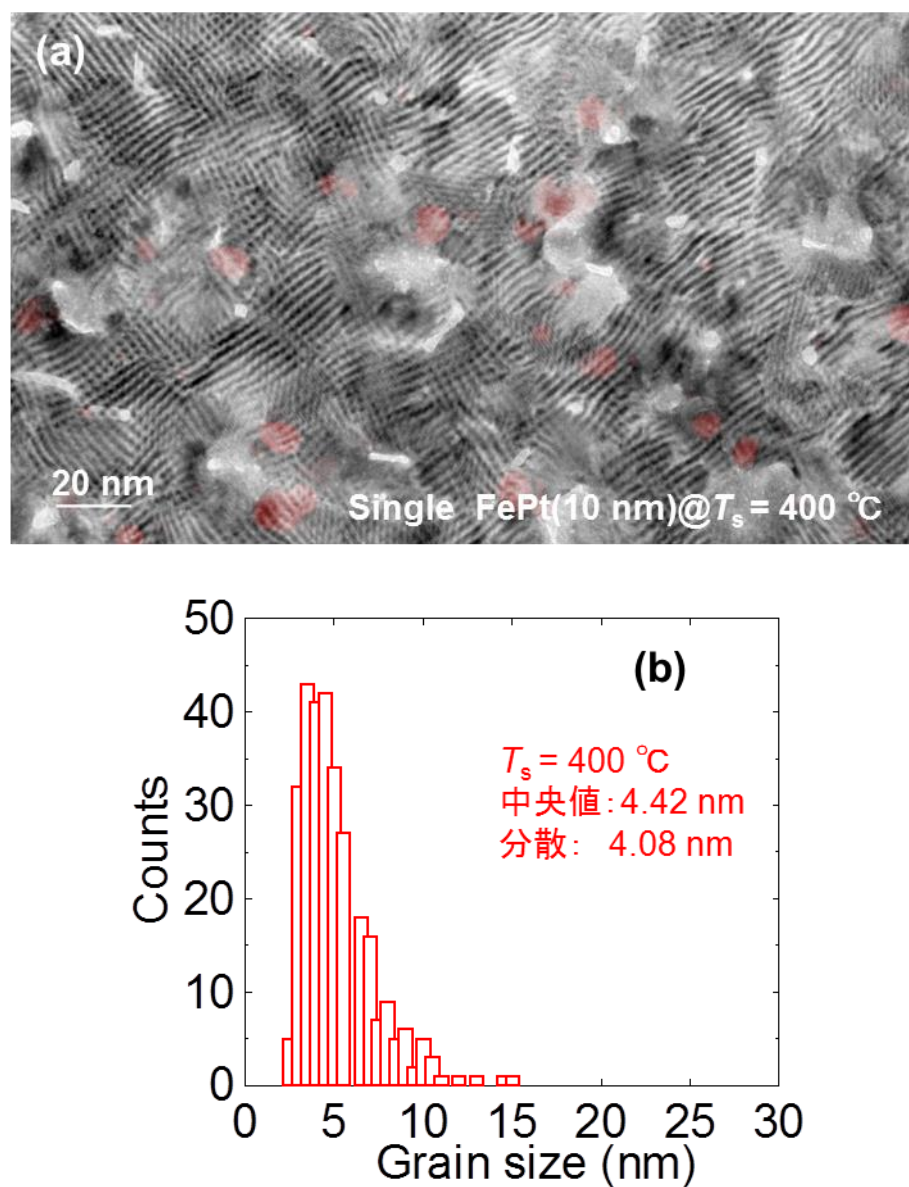


Fig.4.3.6 単結晶膜におけるバリアントサイズ評価結果.

(a)基板温度 400°C で形成した $L1_0$ -FePt 単結晶膜(膜厚 10 nm)の平面 TEM 像.

(b)粒径分布.

4.4 AHE トルク解析によるバリエント存在率の定量評価

本節では、4.3 節で得られたバリエントの構造解析結果をふまえ、第 3 章で示した手法を用いてバリエント存在率の定量評価を行う。

Fig.4.4.1 に基板温度 400 °C で形成した単結晶膜および多結晶膜における、AHE トルク解析により得られた一軸磁気異方性定数 K_1 , K_2 , K の印加磁界 H 依存性を示す。単結晶膜、多結晶膜いずれも 70-90 kOe の印加磁界では一軸磁気異方性定数に大きな変化は見られない。単結晶膜は $K_2 = 3.7 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ であった。過去の文献において、 $L1_0$ -FePt の一軸磁気異方性定数の 2 次の項である K_{u2} の大きさは $1 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ [5], $5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ (規則度に依存しない) [6] 等が報告されている。AHE 解析を行った単結晶膜において、4.3 節で示した XRD, TEM の結果からバリエントの形成が確認されていることから、以降の解析において K_{u2} は最大で $3.5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ 程度と推定した。一方、多結晶膜は $K_2 = 1 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ であった。 K_2 の値から、多結晶膜では単結晶膜と比較してバリエントが多いことが推察される。 K の大きさから評価した交換長は単結晶膜において $L_{\text{ex}} = 5.1 \text{ nm}$ 、多結晶膜において $L_{\text{ex}} = 5.5 \text{ nm}$ であった。バリエント存在率の評価モデルの適用については、4.3 節で求めたバリエントサイズ L_v から、単結晶膜では適用できず ($L_v = 4.4 \text{ nm} < L_{\text{ex}} = 5.1 \text{ nm}$)、多結晶膜では適用可能 ($L_v \approx 10 \text{ nm} > L_{\text{ex}} = 5.5 \text{ nm}$) と分かった。以降は、多結晶膜についてバリエント存在率の定量評価を中心に述べ、単結晶膜は参考として記載する。

バリエント成分と面直規則化成分の一軸磁気異方性の比 $K_u^{\parallel}/K_u^{\perp}$ を推定するため、 c 軸長に着目した。 $L1_0$ -規則合金の規則度と格子長の関係は次式で表される[7]。

$$S^2 = (1-c/a)/(1-(c/a)_{\text{eq}}). \quad (4.4.1)$$

ここで、 $(c/a)_{\text{eq}}$ は完全規則化したときの軸比である。(4.4.1) 式から、 a を一定と仮定すると c の大きさから S^2 を推定できる。ここで、第一原理計算により $L1_0$ -FePt の K_u は S^2 に比例することが報告されている[8]。よって、面直規則化成分とバリエント成分の S^2 の比は $K_u^{\parallel}/K_u^{\perp}$ に対応する。Fig.4.4.2 に XRD プロファイルの FePt(002) 回折ピークから評価した、単結晶膜における面直規則化成分の c 軸長と規則度 S^2 の関係を示す。図には AHE トルク解析を行った試料の c 軸長を矢印で示している(面直規則化成分 c : 塗潰し, バリエント成分 c_v : 白抜き)。多結晶膜では $c = c_v$ より、 $K_u^{\parallel}/K_u^{\perp} = 1$ と推定した。一方、単結晶膜では、 $c < c_v$ より、 K_u^{\parallel} は K_u^{\perp} に比べて十分小さいと予想される。 c 軸長から推定した S^2 の比から $K_u^{\parallel}/K_u^{\perp} = 0.3$ と仮定した。単結晶膜ではバリエントサイズが小さく、結晶が連続的なことから面直配向成分の規則化に伴う格子変形により、 c 軸長が短くなり、バリエント成分の a

軸方向に圧縮応力が加わることでバリエントの規則化が抑制されたと考えられる。

Fig. 4.4.3, Fig.4.4.4 に多結晶膜および単結晶膜における $(K_2 - K_{u2})/K_1$ の規格化印加磁界 $h(=H/H_k)$ 依存性を示す(単結晶膜: $K_u''/K_u^\perp = 0.3$, 多結晶膜: $K_u''/K_u^\perp = 1$). なお, 各図には $K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $f_v = 5, 10, 15, 20 \text{ vol.}\%$ とした計算結果を実線で示す. 測定により得られた K_2/K_1 と $(K_2 - K_{u2})/K_1$ を四角と丸でそれぞれプロットした. 多結晶膜において K_2/K_1 の h に対する変化の傾向は実験結果と計算結果で一致しており, K_u''/K_u^\perp を適切に定めることにより, バリエント存在率は一意に定まることがわかる. $L1_0\text{-FePt}$ 本来の K_{u2} を $1, 3.5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ とすると, $(K_2 - K_{u2})/K_1$ と計算結果を比較することで, 多結晶膜におけるバリエント存在率は $f_v = 16.5\text{-}19.5 \text{ vol.}\%$ とわかった. なお, 単結晶膜において, バリエント存在率は $f_v = 0.5\text{-}7 \text{ vol.}\%$ と算出された.

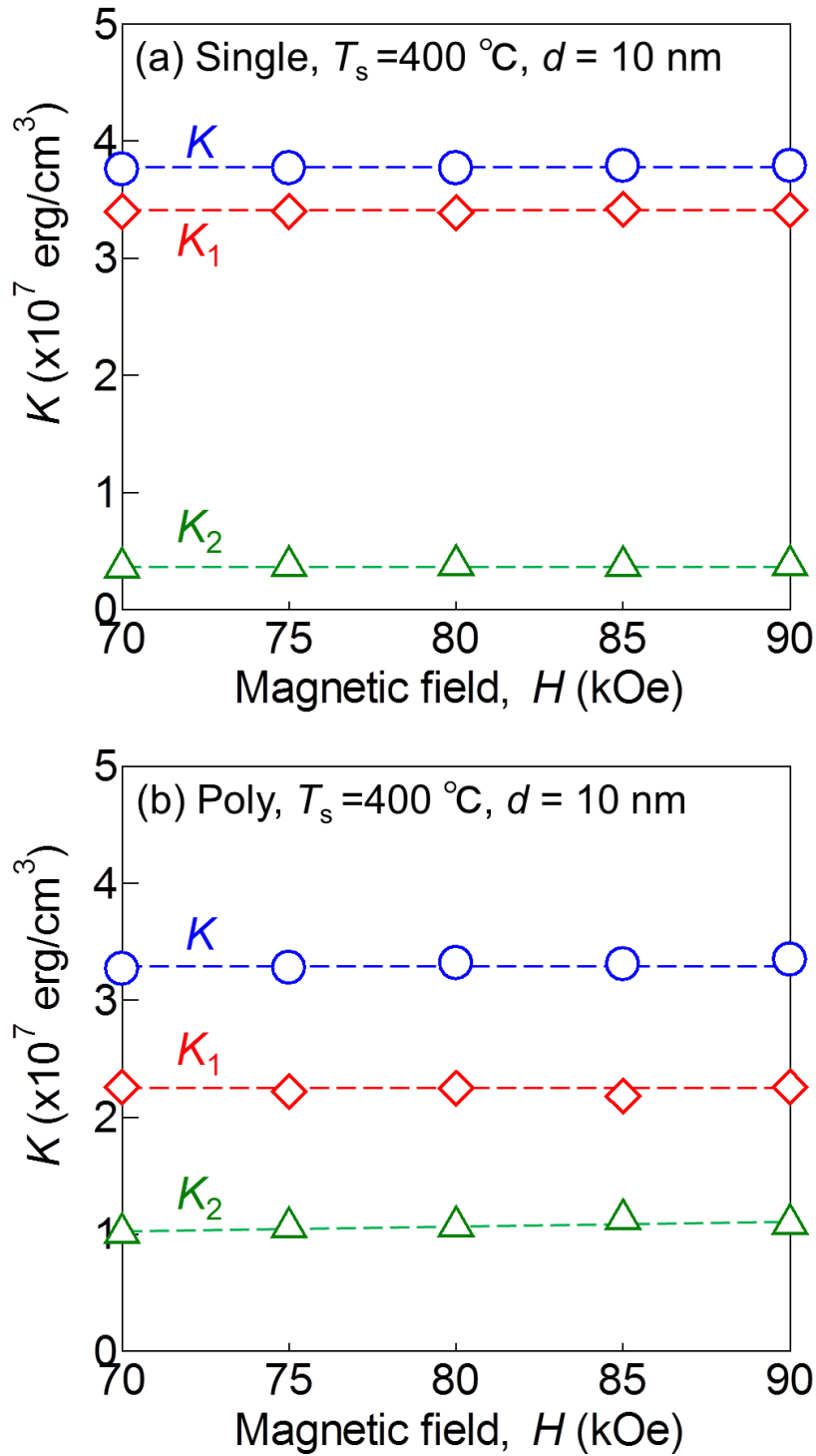


Fig.4.4.1 AHEトルク解析で得られる一軸磁気異方性定数 K (\bigcirc), K_1 (\diamond), K_2 (\triangle)の印加磁界 H 依存性. (a)単結晶膜, (b)多結晶膜.

いずれの試料も基板温度 400°C , 膜厚 10 nm で作製した.

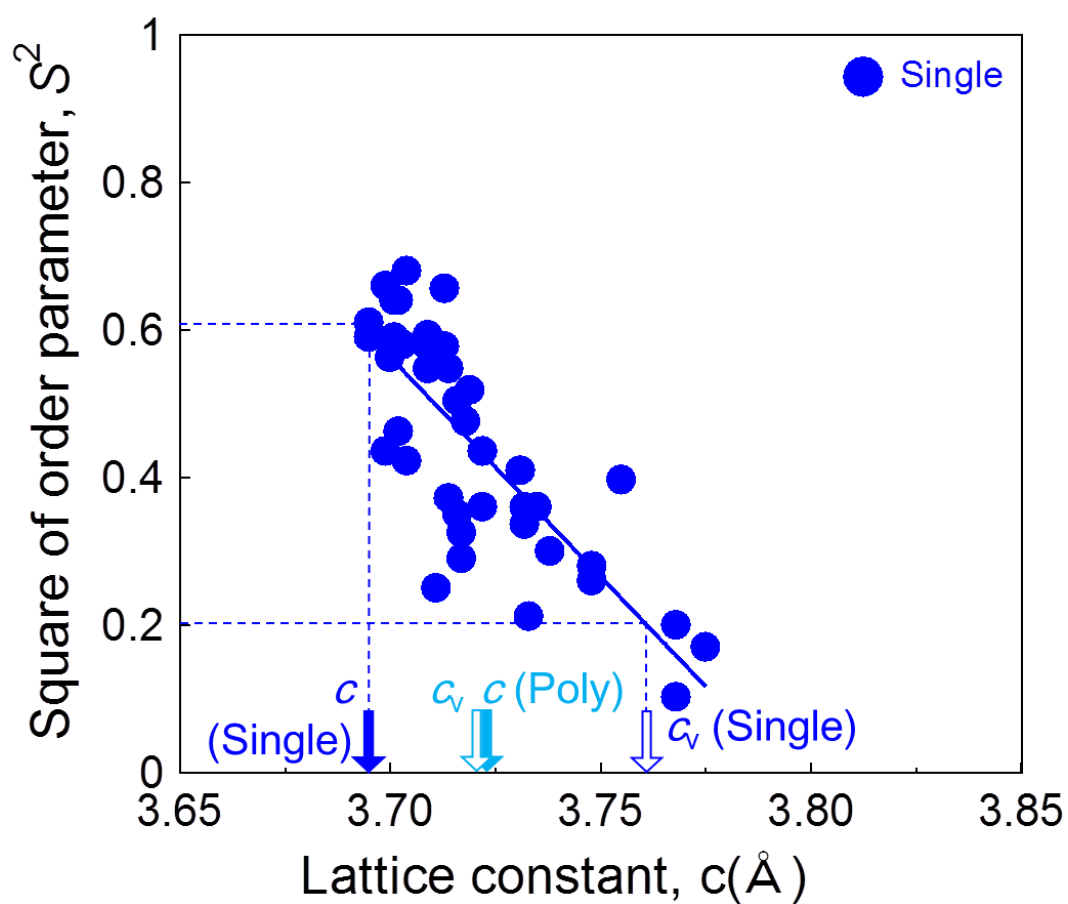


Fig.4.4.2 単結晶膜における規則度の二乗 S^2 と面直規則化成分の c 軸長の関係.
 図には $S^2 \propto c$ としたフィッティング結果を実線で示す. 基板温度 400 °C, 膜厚 10 nm
 で作製した多結晶膜(水色), 単結晶膜(青)の c 軸長を矢印で示している(面直規則化成分 c : 塗潰し, バリエント成分 c_v : 白抜き).

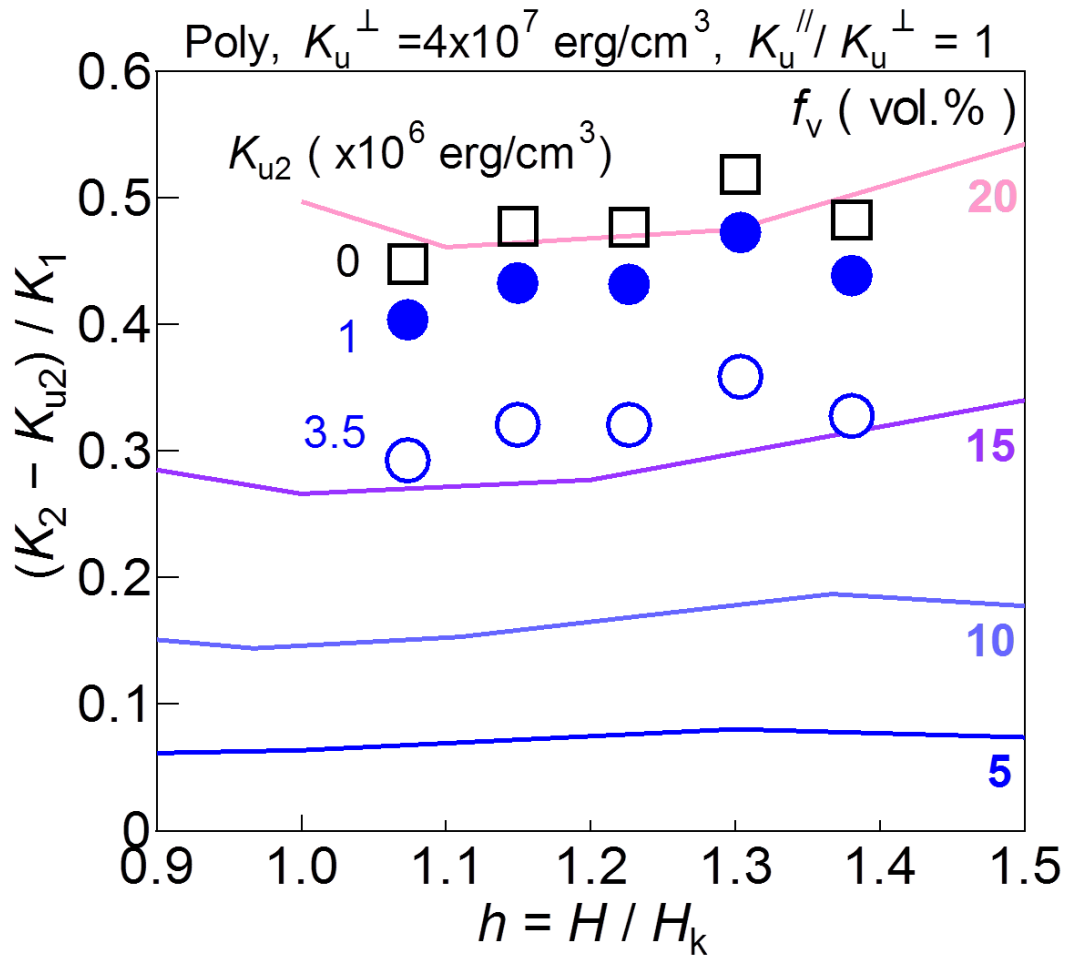


Fig.4.4.3 多結晶膜における $(K_2 - K_{u2})/K_1$ の h 依存性.

$K_{u2} = 1$ (●), 3.5 (○) $\times 10^6$ erg/cm³ としての測定結果を丸のプロットで示す.

図には比較として, $K_{u2} = 0$ とした場合 (K_2/K_1) の点を四角のプロットで示す.

実線は $K_u^\perp = 4 \times 10^7$ erg/cm³, $K_u^\parallel / K_u^\perp = 1$, $f_v = 5, 10, 15, 20$ vol.% としての計算結果.

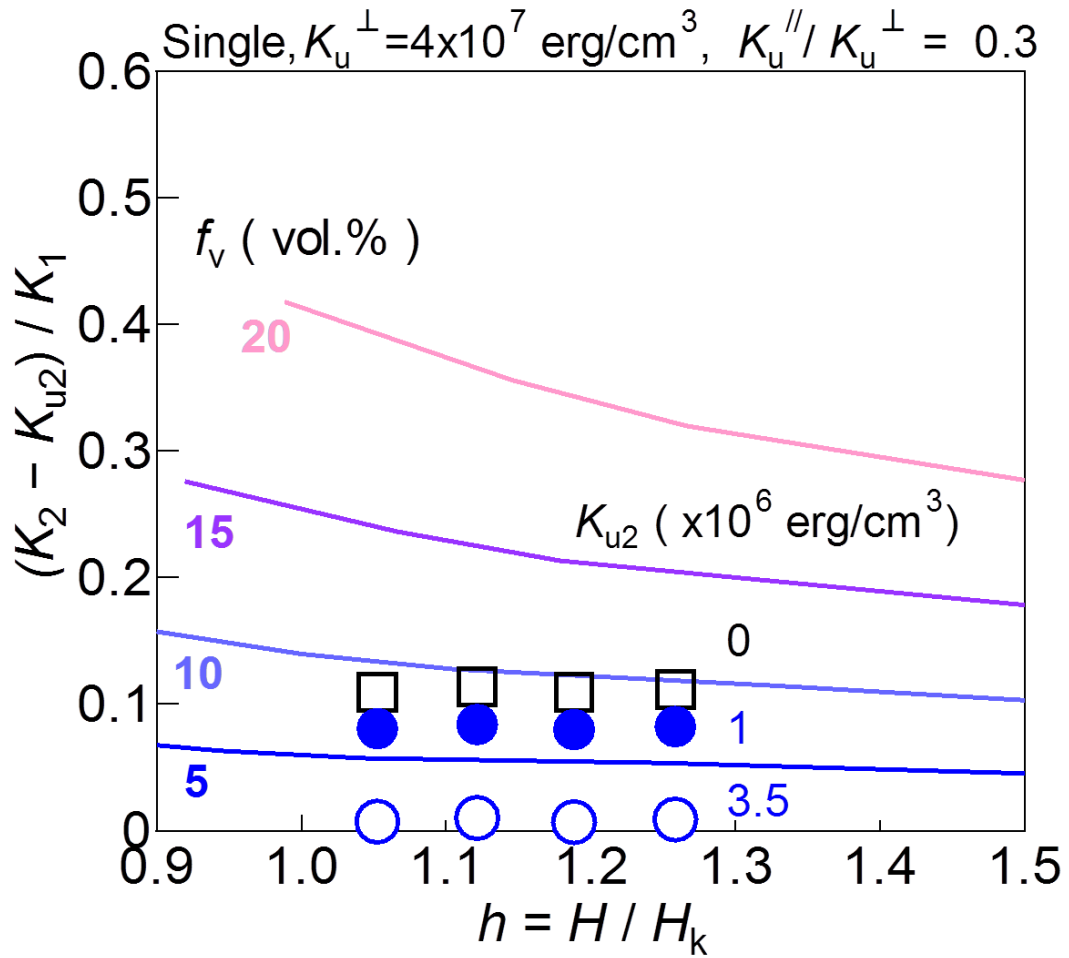


Fig.4.4.4 単結晶膜における $(K_2 - K_{u2})/K_1$ の h 依存性.

$K_{u2} = 1(\bullet), 3.5(\circ) \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ とした測定結果を丸のプロットで示す.

図には比較として, $K_{u2} = 0$ とした場合 (K_2/K_1) の点を四角のプロットで示す.

実線は $K_u^\perp = 4 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$, $K_u^\parallel / K_u^\perp = 1$, $f_v = 5, 10, 15, 20 \text{ vol.\%}$ とした計算結果.

4.5 結言

本章では、標準的な成膜条件(基板温度 400 °C, 膜厚 10 nm)で作製した $L1_0$ -FePt 単結晶膜, 多結晶膜に対してバリエントの構造解析を行い, バリエント存在率を定量的に解析した.

◆ バリエントの構造

多結晶膜のバリエント形成には下地層とのエピタキシャル性が影響していることを示した. FePt 粒子が MgO 下地層の粒界を越えて成長する際に, MgO 層とのエピタキシャル性を失い, 面直方向への規則化の優先性が無くなることでバリエントが形成されているものと考えられる. バリエントは膜平面上に粒径 5-18 nm で多数分布していた. 粒径分布の中央値をバリエントサイズとすると $L_v = 10$ nm とわかった. バリエント成分の規則度は面直規則化成分と同程度であり, $K_u^{//}/K_u^{\perp} = 1$ と推定した.

単結晶膜ではバリエント粒径は 3-7 nm に分布しており, $L_v = 4.4$ nm とわかった. バリエント成分の規則度は面直規則化成分に比べて低いことがわかった. バリエントサイズが小さく, 面直規則化成分と結晶が連続的な点などから, 面直配向成分の c 軸長が規則化で短くなり, バリエント成分の a 軸方向に圧縮応力が加わることでバリエントの規則化が抑制されたと考えられる.

◆ AHE トルク波形解析を用いたバリエントの定量評価

多結晶膜において, スピンの交換長は $L_{ex} = 5.5$ nm はバリエントサイズ $L_v = 10$ nm より小さく, 第 3 章に述べたバリエント存在率評価モデルの適用は妥当と判断された. そして $L1_0$ -FePt 薄膜に適用した結果, 以下の知見が得られた.

- $K_2 = 1 \times 10^7$ erg/cm³ $> K_{u2}$ であり, バリエントが形成されていることがわかった.
- 測定により得られた K_2/K_1 の h に対する変化の傾向は計算結果とよく一致しており, モデルの妥当性を裏付けている.
- $K_{u2} = 1-3.5 \times 10^6$ erg/cm³ とすると, バリエント存在率は $f_v = 16.5-19.5$ vol. % であることを定量的に決定した.

なお, 単結晶膜において, $K_2 = 3.7 \times 10^6$ erg/cm³ であり, バリエントは膜中にほとんど存在していないことが明らかになった.

参考文献

- [1] G. K. Williamson, and W. H. Hall, *Acta Metallurgica*, **1**, 22 (1953).
- [2] H. Ho, J. Zhu, A. Kulovits, D. E. Laughlin, and J-G. Zhu, *J. Appl. Phys.*, **116**, 193510 (2014).
- [3] G. Brusdeylins, R. B. Doak, J. G. Skofronick, and J. P. Toennies, *Surf. Sci.*, **128**, 191 (1983).
- [4] H. Onishi, C. Egawa, T. Aruga, and Y. Iwasawa, *Surf. Sci.*, **191**, 479(1987).
- [5] K. Inoue, H. Shima, A. Fujita, K. Ishida, K. Oikawa, and K. Fukamichi, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 102503(2006).
- [6] S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, T. Miyazaki, Y. Shimada, and K. Fukamichi, *Phys. Rev. B*, **66**, 024413 (2002).
- [7] V. V. Maykov, A. Ye. Yermakov, G. V. Ivanov, V. I. Khrabrov, and L. M. Magat, *Phys. Met. Metall.*, **67**, 76 (1989).
- [8] Y. Kota, and A. Sakuma, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 084705 (2012).

第 5 章

$L1_0$ -FePt 多結晶膜の構造と一軸磁気異方性の基板温度および膜厚依存性

5.1 緒言

第 4 章において、基板温度 400 °C で作製した膜厚 10 nm の $L1_0$ -FePt 多結晶膜におけるバリエーション存在率は $f_v = 16.5$ -19.5 vol. % であり、同条件で作製した単結晶膜と比較してバリエーション存在率は非常に高いことが確かめられた。

本章では、 $L1_0$ -FePt 多結晶膜におけるバリエーションや規則度といった構造と一軸磁気異方性の基板温度や膜厚に対する依存性を明らかにし、多結晶膜におけるバリエーション形成機構について検討することを目的とした。

序論で述べたように、基板温度は FePt の規則化に強く影響する因子である[1-2]。一方、膜厚は、MgO のように FePt との格子不整合が大きい下地において、格子歪みが増加し、バリエーション形成に影響することが予想される[3-4]。

5.2 節では、基板温度を $T_s = 250$ -480 °C の範囲で変化させて作製した、膜厚 $d = 10$ nm の $L1_0$ -FePt 多結晶膜について、同条件で作製した単結晶膜と比較しながら構造と一軸磁気異方性の基板温度依存性を調べた。初めに磁気特性や基本的な構造を述べ、AHE トルク解析によりバリエーション存在率を解析する。5.3 節では、基板温度を $T_s = 400$ °C で一定として、膜厚を $d = 2$ -14 nm の範囲で変化させて作製した $L1_0$ -FePt 多結晶膜について、構造と一軸磁気異方性の膜厚依存性を調べた。球面収差補正操作透過電子顕微鏡 (spherical-aberration constant corrected Scanning Transmission Electron Microscope, Cs-STEM) による断面方向の構造解析結果を基に、膜厚がバリエーション形成や規則化に与える影響を検討した。5.4 節は結言である。

5.2 構造と K_u の基板温度依存性(単結晶膜と比較)

まず, 作製した試料の磁気特性および基本構造について述べる. Fig. 5.2.1 に作製した $L1_0$ -FePt 単結晶膜, 多結晶膜における磁化曲線の基板温度 T_s 依存性を示す. 単結晶膜(Fig.5.2.1(e)-(h))では $T_s \geq 350$ °Cにおいて, 垂直磁化膜が形成されていることがわかる. 基板温度の増加にともない面内方向の磁化曲線の傾きが減少しており, 面直方向への一軸磁気異方性の増加がうかがわれる. 一方, 多結晶膜(Fig.5.2.1(a)-(d))では単結晶膜よりも 100 °C低い $T_s = 250$ °Cから垂直磁化膜が形成され, 同温度において高い飽和磁化 M_s (約 1100 emu/cm³)を示した. これらの結果から多結晶膜では $T_s = 250$ °Cから規則化が促進していることが予想される. ただし, 基板温度の増加により面内の保磁力は増加していた.

Fig.5.2.2にXRDプロファイルの基板温度依存性を示す. 単結晶膜, 多結晶膜いずれも $T_s = 250$ °Cから $L1_0$ -FePt の面直配向に対応した回折ピークが観察された. 単結晶膜では, 基板温度の増加にともない FePt(001),(002)の回折強度が増加していた(Fig.5.2.2(b)). 一方, 多結晶膜では, $T_s = 250$ °Cから単結晶膜と比較して明瞭な FePt(001)の回折線が観察された(Fig.5.2.2.(a)). Fig.5.2.3 に FePt(001)/FePt(002)から評価した長距離規則度 S の基板温度 T_s 依存性を示す. 単結晶膜, 多結晶膜いずれも基板温度の増加にともない規則度が増加した. 多結晶膜では, $T_s = 250$ °Cから高い規則度($S =$ 約 0.6)を示し, Fig.5.2.1 の磁化曲線と対応していた. 多結晶膜では粒界を多く含むため, 膜成長に伴う再結晶化の過程で原子拡散が促進され[2], 単結晶膜と比較して低温から規則化したと予想される. -

Fig.5.2.4 に走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope, SEM)を用いて観察した FePt 薄膜の表面状態の基板温度依存性を示す. 単結晶膜(Fig.5.2.4(e)-(h)), 多結晶膜(Fig.5.2.4(a)-(d))いずれも基板温度の増加にともなう結晶サイズの増大が観察された. Fig.5.2.5に面内XRDの回折ピークから, Williamson-Hallプロット[5]を用いて評価した結晶子サイズの基板温度 T_s 依存性を示す. 単結晶膜, 多結晶膜いずれも基板温度の増加とともに結晶子サイズは増加しており, SEM 観察により得られた結果と定性的に一致している. なお, 単結晶膜における結晶子サイズは, 単結晶膜中の不連続性を反映したものと考えられる.

以上の磁気特性および基本構造をもつ試料について, バリエーション率 f_v を評価した. Fig.5.2.6 に単結晶膜, 多結晶膜における一軸磁気異方性定数(K , K_1 , K_2)の基板温度依

存性を示す. なお, K は外部印加磁界 $H = 70$ kOe における AHE トルク波形解析により評価した. 多結晶膜は基板温度 250 °C における $K = 2.7 \times 10^7$ erg/cm³ と大きく, 磁化曲線や規則度と対応していた. しかし, 基板温度 300 °C 以上において K は 3.5×10^7 erg/cm³ 程度で飽和していた. いずれの基板温度でも $K_2/K_1 =$ 約 0.5 であり, K_2 が大きいことからバリエント存在率が多いとわかる. 一方, 単結晶膜において, K, K_1 は基板温度の増加とともに単調に増加した. ここで, K_2 は基板温度の増加とともに緩やかに低下し, バリエントが減少している様子がうかがわれる.

このようにして評価した K の値からスピンの交換長 L_{ex} を算出し, バリエント存在率評価モデルが適用可能な領域を検討した. Fig.5.2.7(a) に多結晶膜における交換長 L_{ex} の基板温度 T_s 依存性を示す. 図中には比較として, 面内 XRD から評価した結晶子サイズ D および TEM 像から評価したバリエントサイズ L_v を示す. 交換長は基板温度 $T_s > 300$ °C において約 5.5 nm で一定を示した. Fig.5.2.7(b) に 4.3 節で示した基板温度 $T_s = 400, 480$ °C で作製した多結晶膜におけるバリエント粒子の粒径分布を示す. いずれの基板温度で作製した多結晶膜においても, バリエント粒径は最小でも 5 nm 程度である. ここで, $T_s = 400, 480$ °C の粒径分布と結晶子サイズ D を比較すると, バリエントは面直配向粒子の平均的な粒子サイズと同程度のものも存在することが分かる. バリエントサイズが結晶子サイズに比例すると仮定し, 基板温度 $T_s \geq 350$ °C の範囲でモデルを適用可能 ($L_v > L_{ex}$) と推定した.

$K_u^{||} / K_u^{\perp}$ を推定するため, 面直規則化成分の c 軸長 c とバリエント成分の c 軸長 c_v を比較した. Fig.5.2.8 に c 軸長の基板温度 T_s 依存性を示す. 図中には $S = 1$ における c 軸長の文献値[6], fccFe と fccPt の格子長[7]から Vegard 則[8]を用いて算出した $S = 0$ での格子長をそれぞれ破線で記載した. 多結晶膜では, 基板温度の増加により c, c_v はともに $S = 1$ に向かって減少した. これは基板温度の増加にともない, バリエント成分も面直配向成分と同様に規則化が促進したことを示唆している. この結果から, すべての基板温度で $K_u^{||} / K_u^{\perp} = 1$ と推定した. 一方, 単結晶膜では基板温度の増加により c は規則化に対応して単調に減少したが, c_v は $S = 0$ に向かって増加した. これは基板温度の増加によりバリエント成分の規則化が抑制されたことを示唆している. 単結晶膜では基板温度増加で面直配向成分の規則化にともなう格子変形 (c の減少) が進むことで, 面直配向成分と結晶が連続的でサイズの小さいバリエント粒子の a 軸方向 (面直方向) に圧縮応力が加わり, バリエント成分の規則化が抑制されたと考えられる.

多結晶膜において評価したバリエント存在率 f_v の基板温度 T_s 依存性を Fig.5.2.9 に示す. 図中には比較として, $K_{u2} = 0$ erg/cm³ とした場合の評価値を黒のプロットで示す. バリエント存在率は基板温度の増加によりわずかに増加し, 基板温度 480 °C では 16 - 20

vol. % ($K_{u2} = 1-3.5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$)を示した。バリエント存在率の増加は、基板温度の増加にともなう FePt の粒成長により、MgO 粒界を越えて成長する領域が増加したためと考えられる。

多結晶膜における、バリエントによる影響を除いた面直規則化成分の一軸磁気異方性定数 K_u^\perp の基板温度 T_s 依存性を Fig.5.2.10 に示す。 K_u^\perp は $K_{u2} = 1 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ として評価したバリエント存在率 f_v をもとに求めた。図中には、比較として AHE トルク解析で得られた K の値を白抜きで示す。 K_u^\perp は K と比較して約 $1 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ 大きいことが分かる。Fig.5.2.11 に一軸磁気異方性定数と規則度の二乗 S^2 の関係を示す。単結晶膜で K は第一原理計算による理論予測[9](破線)と一致する。一方、多結晶膜で K は S^2 に対して小さい値を示している。ここで、多結晶膜の K_u^\perp に着目すると、理論直線と一致している。このことから、多結晶膜においてもバリエントの影響を除くと、 K_u は S^2 に比例することがわかった。

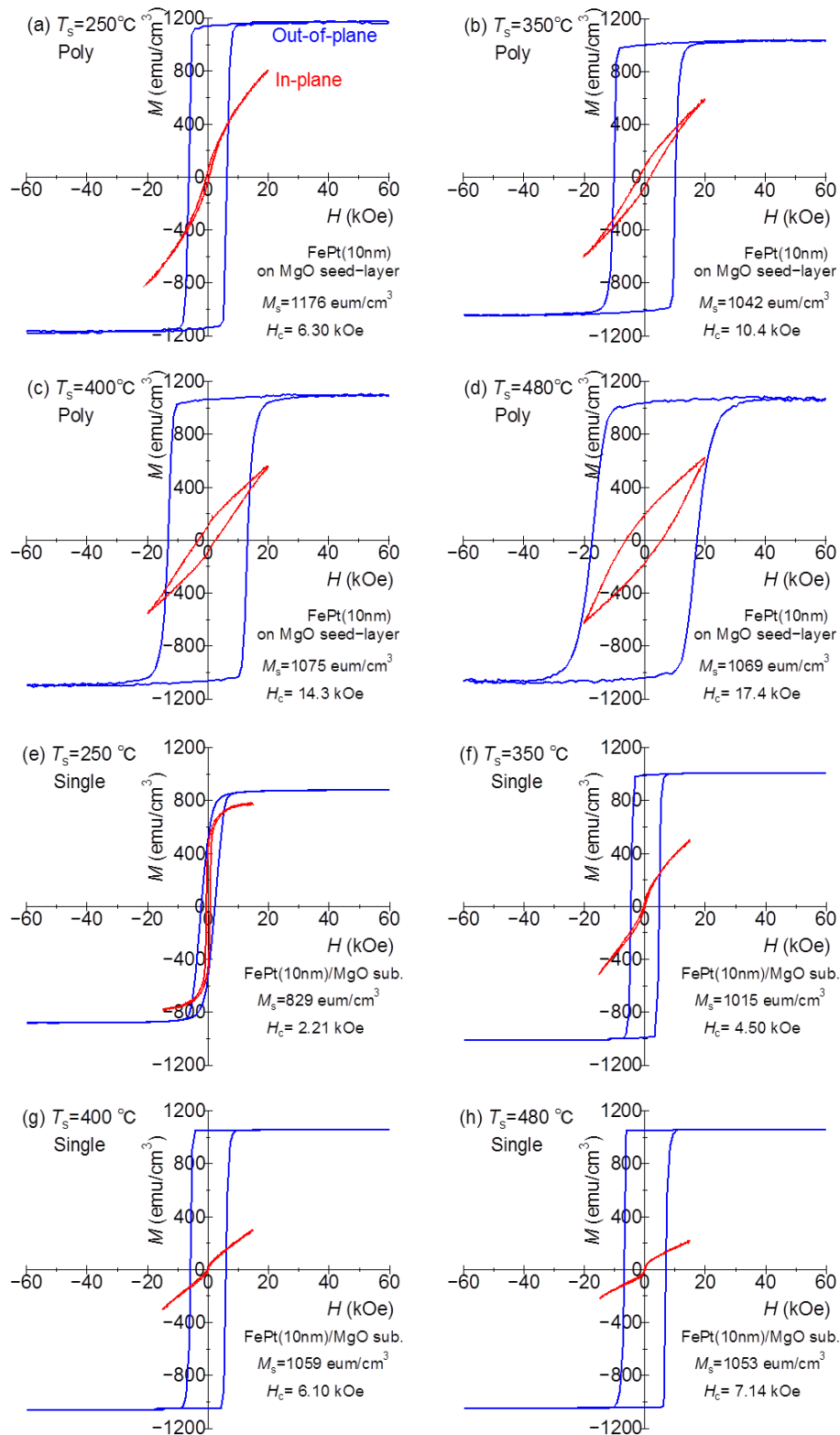


Fig. 5.2.1 $L1_0$ -FePt(a)-(d)多結晶膜, (e)-(f)単結晶膜の磁化曲線の基板温度 T_s 依存性.

T_s = (a), (e)250, (b), (f)350, (c), (g)400, (d), (h)480 °C.

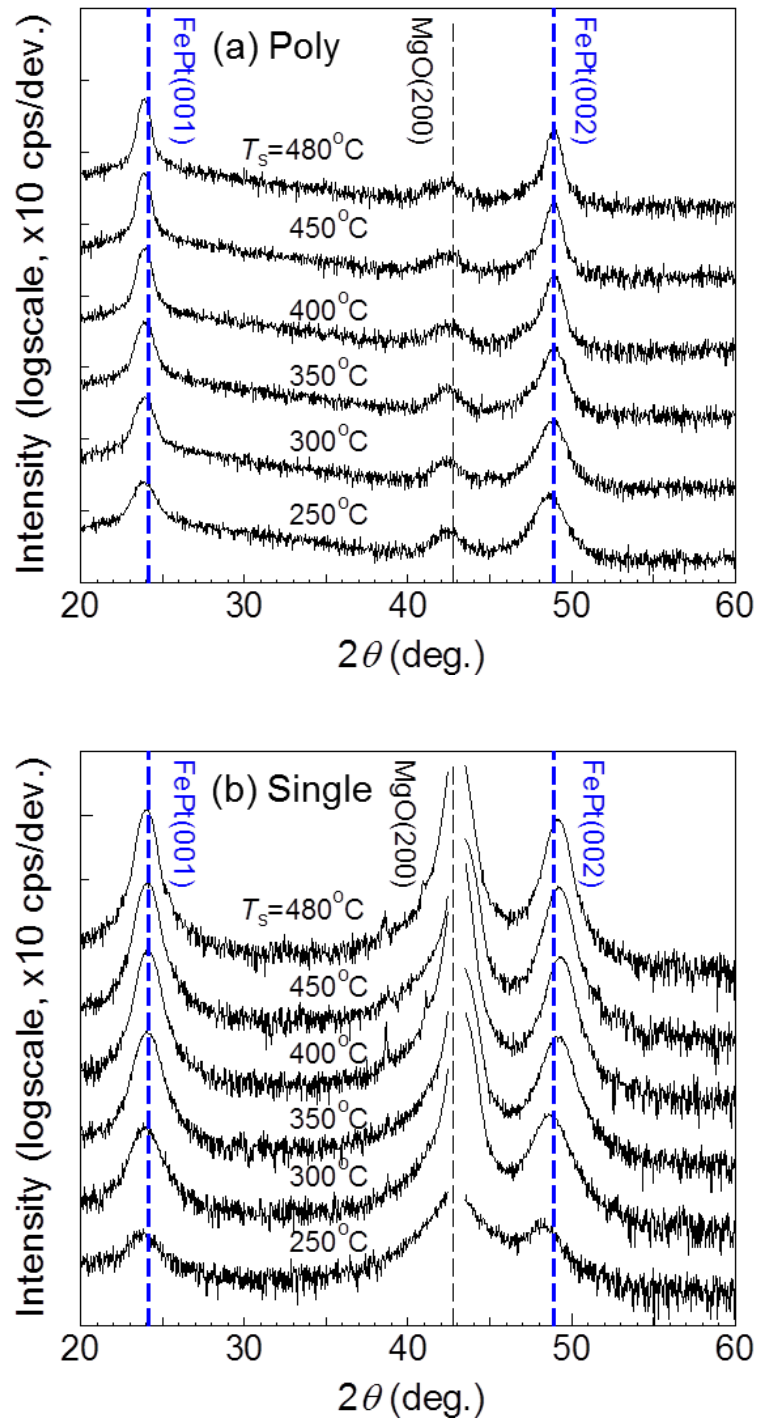


Fig. 5.2.2 $L1_0$ -FePt(a)多結晶膜, (b)単結晶膜の面直 XRD パターンの基板温度 T_s による変化.

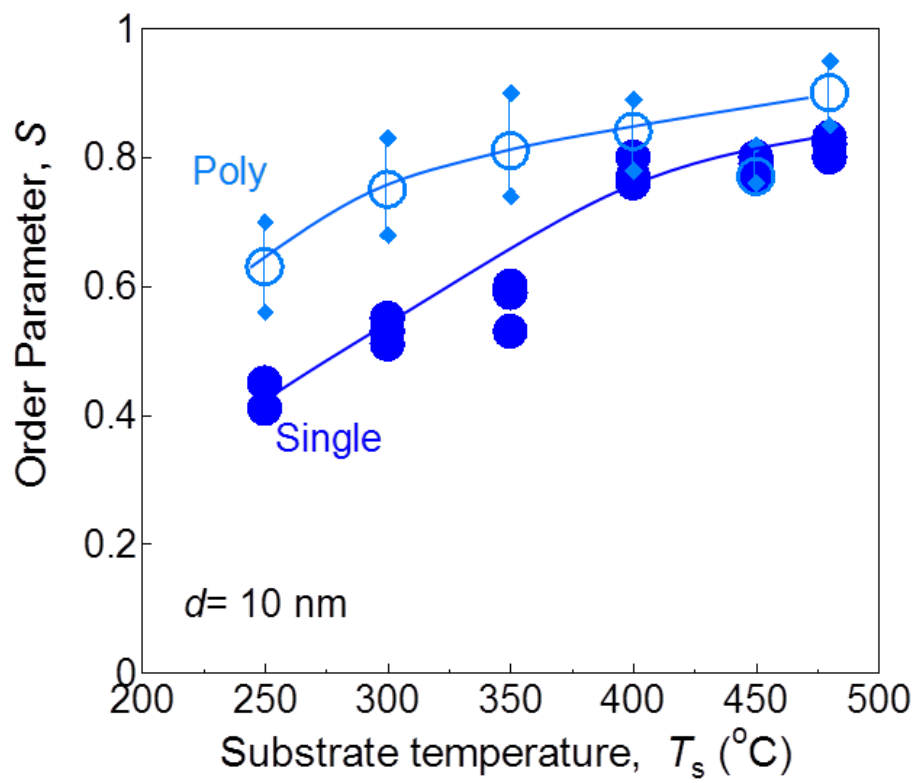


Fig. 5.2.3 $L1_0$ -FePt 多結晶膜(\circ), 単結晶膜(\bullet)の規則度 S の基板温度 T_s 依存性.

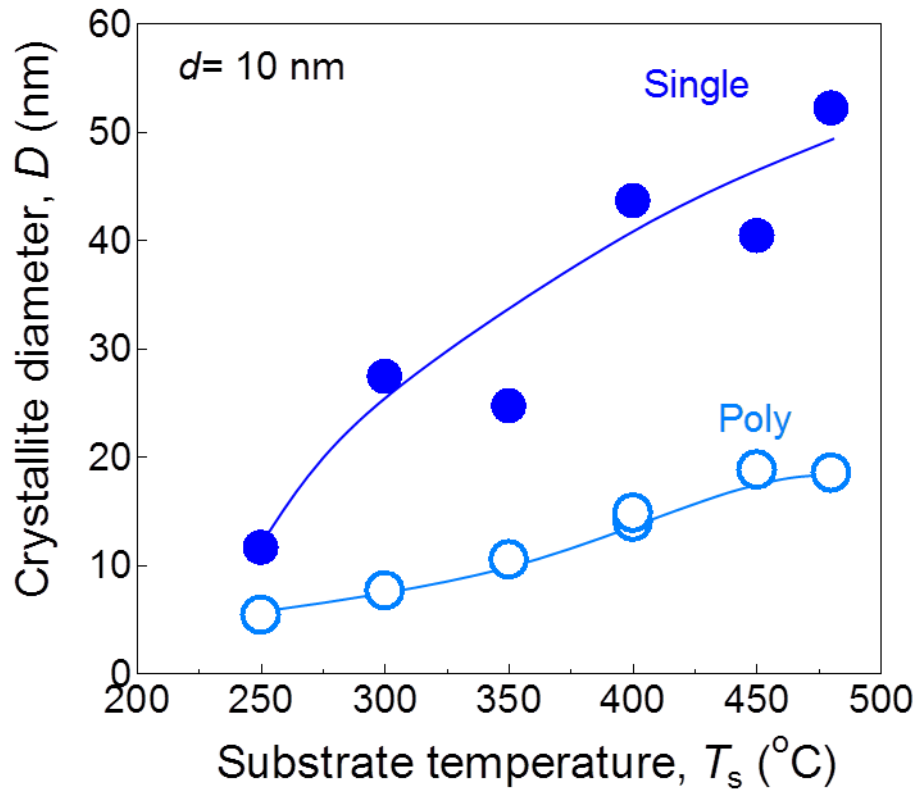


Fig. 5.2.4 $L1_0$ -FePt 多結晶膜(○), 単結晶膜(●)の結晶子径 D の基板温度 T_s 依存性.

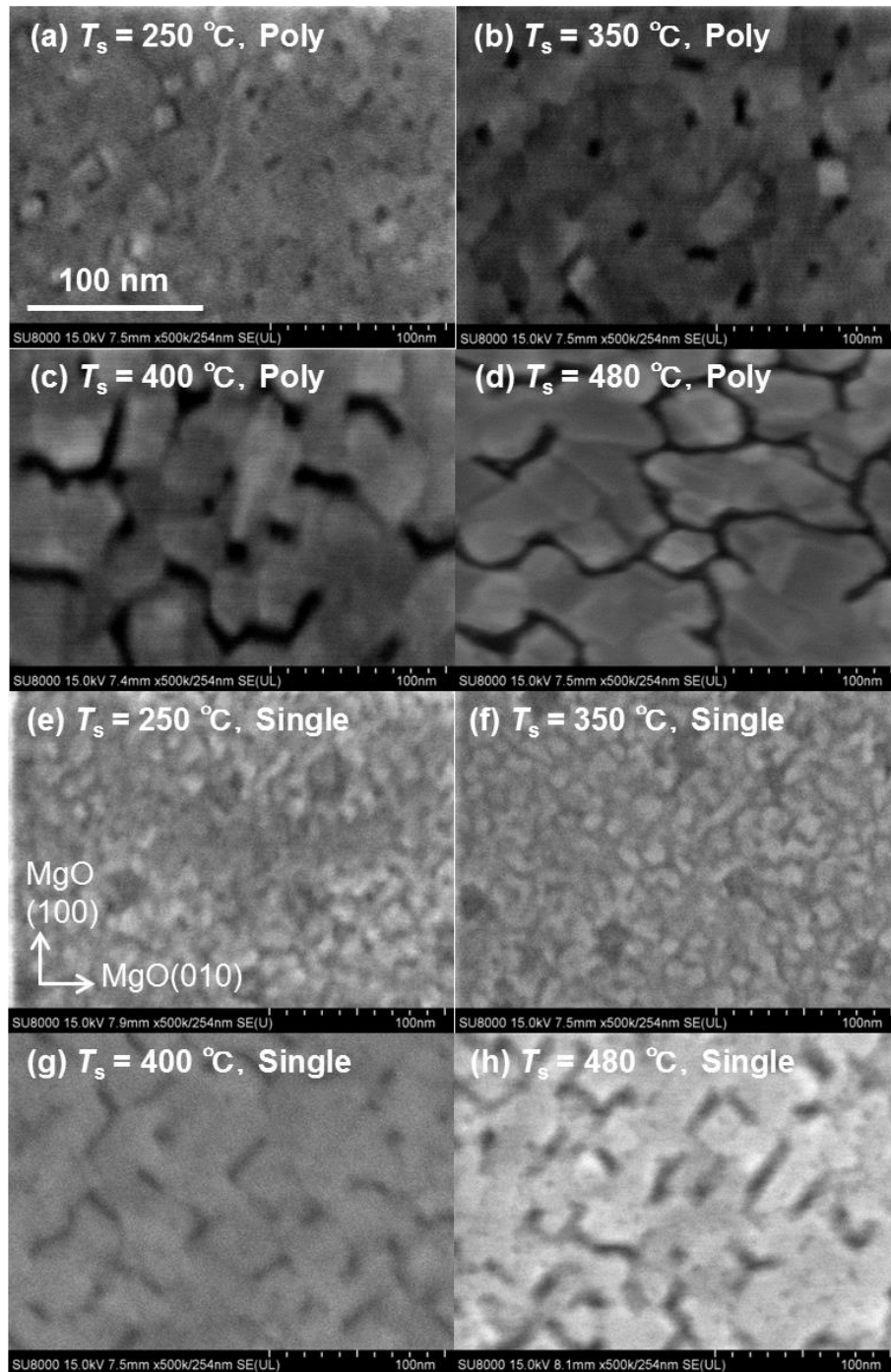


Fig. 5.2.5 FePt 薄膜の表面状態の基板温度 T_s 依存性.

(a)-(d)多結晶膜, (e)-(h)単結晶膜.

$T_s =$ (a), (e)250, (b), (f)350, (c), (g)400, (d), (h)480 °C.

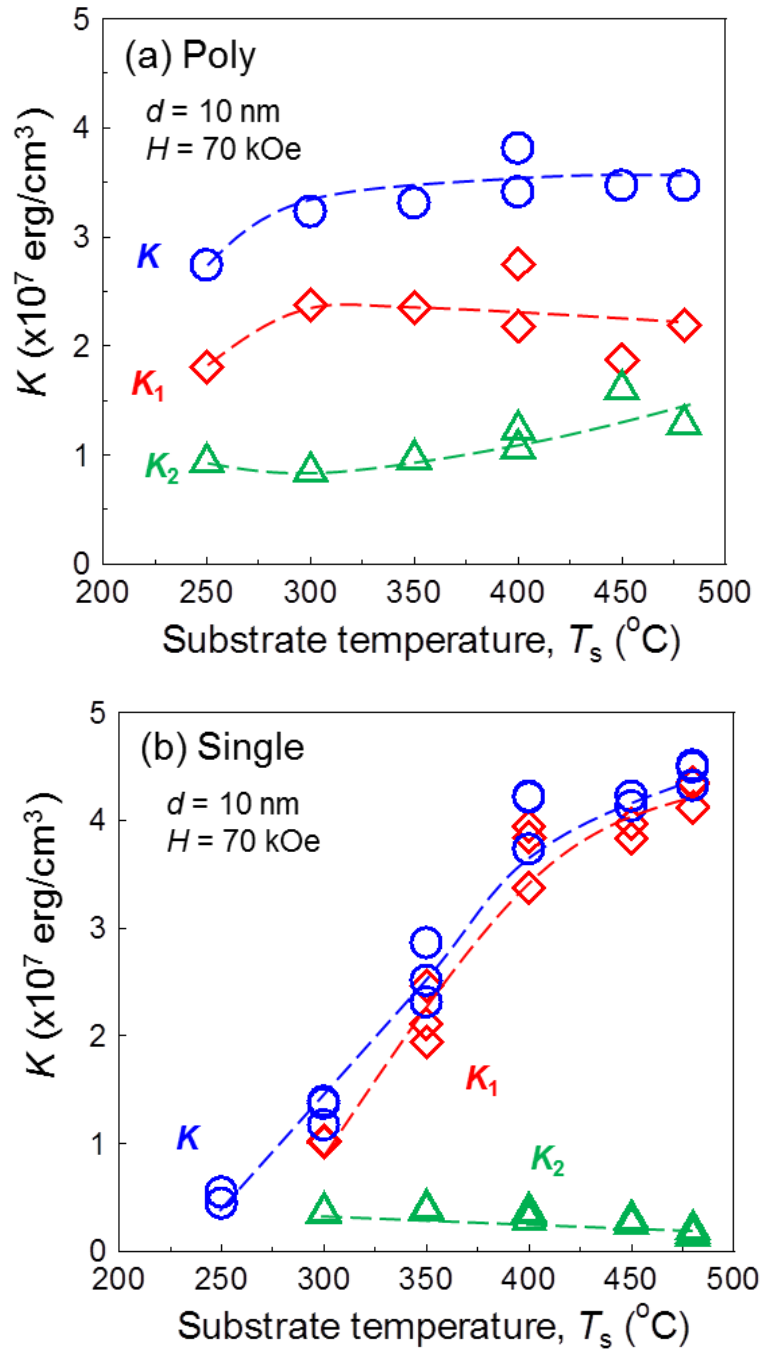


Fig. 5.2.6 AHEトルク解析で得られる一軸磁気異方性定数 K (\circ), K_1 (\diamond), K_2 (\triangle)の基板温度 T_s 依存性. (a)多結晶膜, (b)単結晶膜.

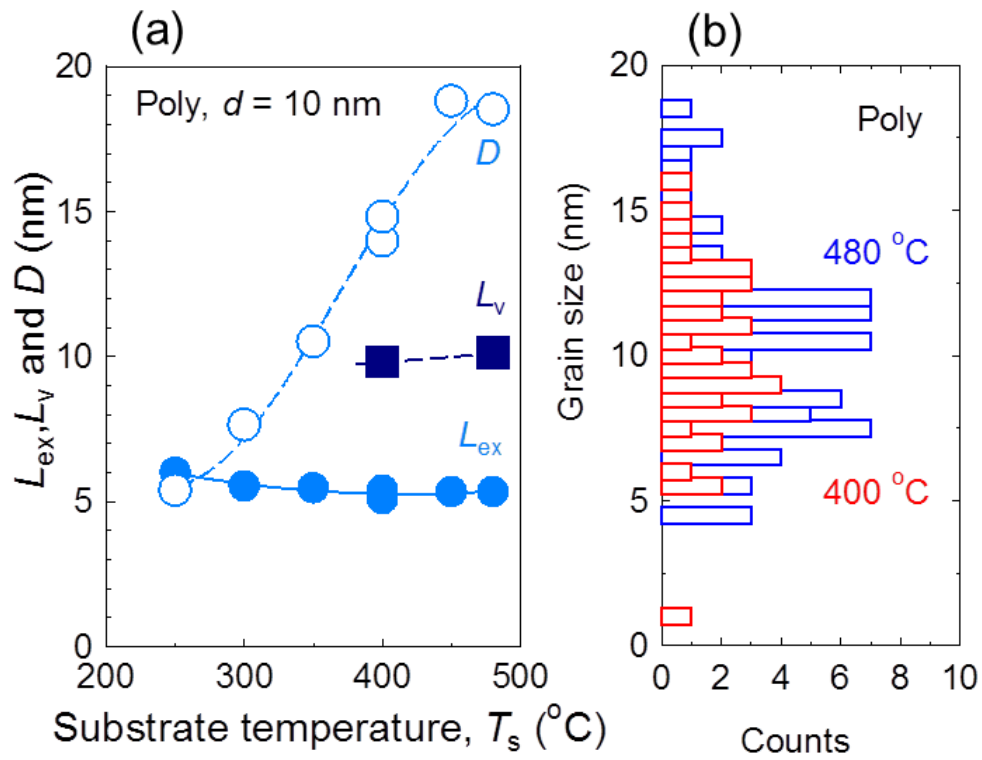


Fig. 5.2.7 (a) スピンの交換長 L_{ex} (●), バリエントサイズ L_v (■)および結晶子径 D (○)の基板温度 T_s 依存性. (b) $T_s = 400, 480$ °Cの FePt 多結晶膜のバリエントの粒径分布

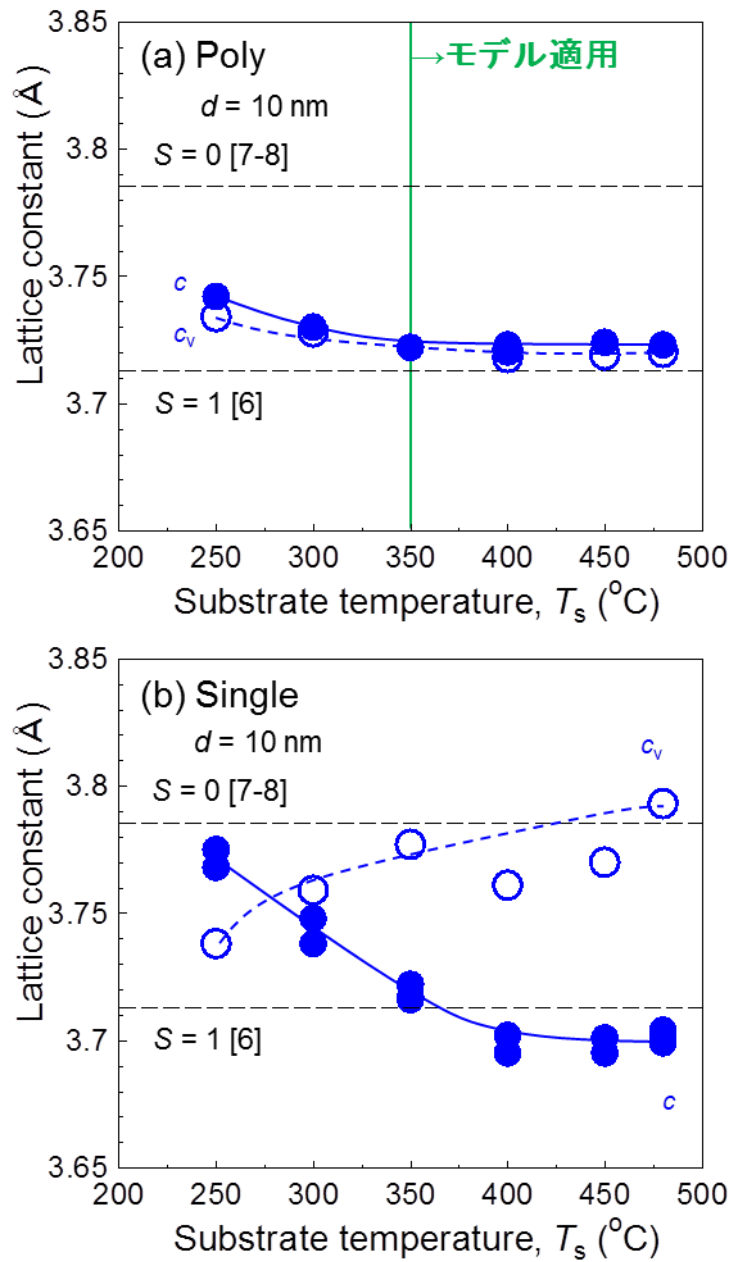


Fig. 5.2.8 FePt における c 軸長の基板温度 T_s 依存性. (a)多結晶膜, (b)単結晶膜. 面直規則化成分とバリエーション成分の c 軸長をそれぞれ c (塗潰し), c_v (白抜き) 示している. 図には $S = 1$ における c 軸長の文献値[6], fccFe と fccPt の格子長[7]から Vegard 則[8]を用いて算出した $S = 0$ での格子長をそれぞれ破線で記載.

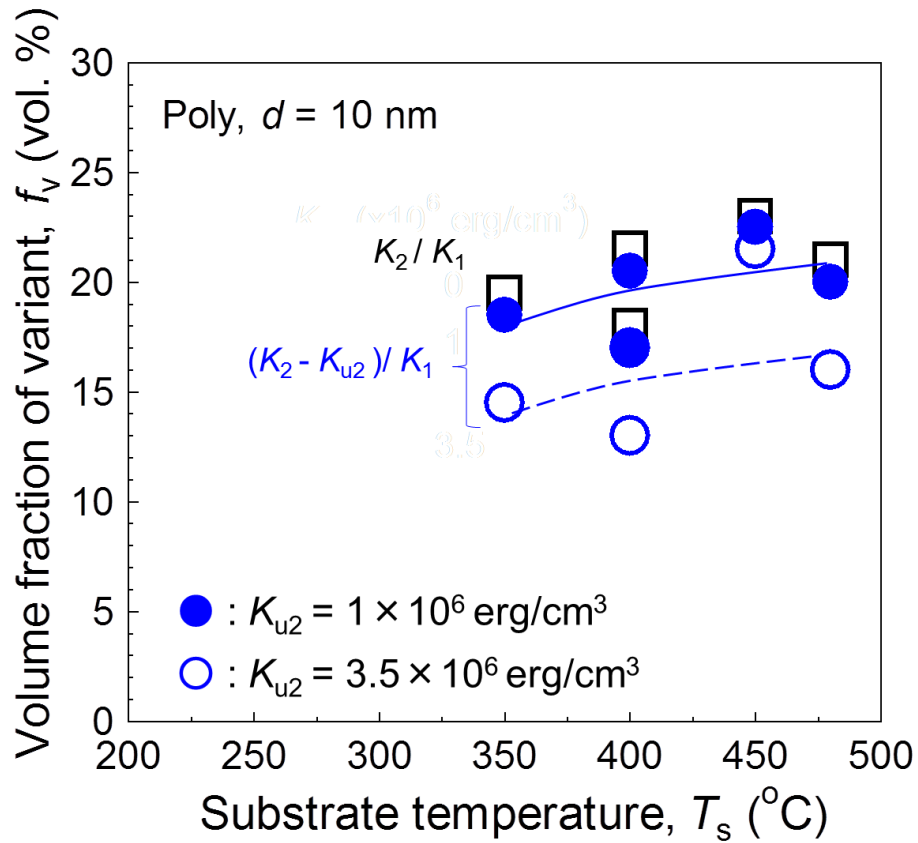


Fig. 5.2.9 多結晶膜におけるバリエント存在率 f_v の基板温度 T_s 依存性.

$K_{u2} = 1(\bullet), 3.5(\circ) \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ とした評価値を青色のプロットで示す.

図には比較として, $K_{u2} = 0 \text{ erg/cm}^3(\square)$ とした場合の評価値を黒のプロットで示す.

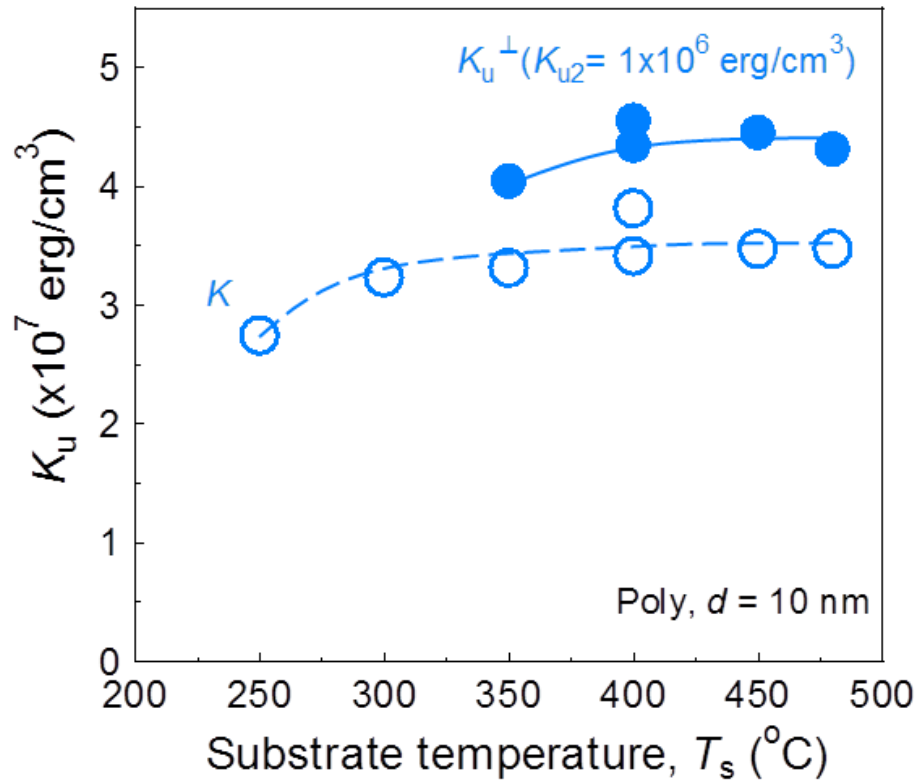


Fig. 5.2.10 多結晶膜におけるバリエーションの影響を除いた、面直規則化成分の一軸磁気異方性 K_u^\perp の基板温度 T_s 依存性(●). K_u^\perp は $K_{u2} = 1 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ として評価したバリエーション存在率 f_v をもとに求めた. 図には比較として AHE トルク測定で得られた一軸磁気異方性 K の基板温度依存性(○)を記載.

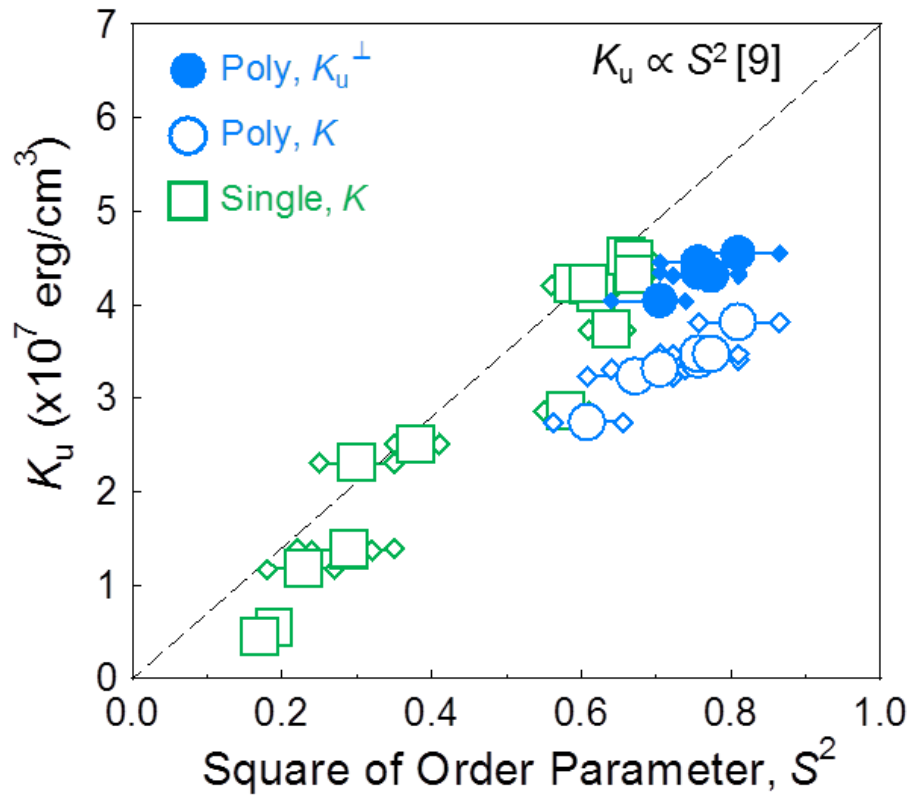


Fig. 5.2.11 一軸磁気異方性 K_u と規則度 S の関係. 図には, AHE トルク解析で得られた一軸磁気異方性 K (○: 多結晶膜, □: 単結晶膜) と多結晶膜でバリエーションの影響を除いた面直規則化成分の一軸磁気異方性 K_u^\perp (●) を記載. 破線は第一原理計算による理論予測 ($K_u \propto S^2$) [9].

5.3 構造と K_u の膜厚依存性

Fig.5.3.1 および Fig.5.3.2 に基板温度 400 °C で作製した多結晶膜, 単結晶膜における AHE トルク解析で得られた一軸磁気異方性 K と長距離規則度 S の膜厚 d 依存性をそれぞれ示す. 膜厚 $d = 4\text{--}14\text{ nm}$ において, 多結晶膜の規則度 S は単結晶膜に比べて大きい, 磁気異方性 K は小さい. これは多結晶膜でバリエントの形成により磁気異方性が見かけ上低下していると考えられる. 膜厚の減少により, 多結晶膜と単結晶膜で規則度 S と磁気異方性 K が一致する傾向がみられる. これは多結晶膜におけるバリエントの減少を示唆している. また, 膜厚の減少により K と S は減少していた. ここからは, 膜厚の減少による①バリエントの減少, ② K, S が減少する理由について考察した.

Fig.5.3.3 に多結晶膜における AHE トルク解析で得られた一軸磁気異方性定数 K, K_1, K_2 の膜厚 d 依存性を示す. 膜厚の減少とともに K_2 は緩やかに低下しており, バリエントが減少していることがわかる. バリエントの減少は, 膜厚の低下により MgO 粒界を超えて成長する FePt の領域が減少したためと考えられる. しかしながら, 膜厚 $d = 2\text{ nm}$ においても $K_2 = 7 \times 10^6\text{ erg/cm}^3$ であり, バリエントが形成されていることがわかる. この結果は MgO 粒界を越えてエピタキシャル性を失って成長する FePt 粒がほとんど存在しないと考えられる低膜厚においても, バリエントが形成されることを示唆している. なお, バリエントサイズの膜厚依存性評価は困難なため, バリエント存在率の定量評価については行わなかった.

低膜厚においてもバリエントが形成される原因を考察するため, 球面収差補正操作透過電子顕微鏡(spherical-aberration constant corrected Scanning Transmission Electron Microscope, Cs-STEM)による観察を行った. Fig.5.3.4(a)に, MgO と FePt の界面付近に着目した bright-field(BF)像を示す. 試料は MgO(100)単結晶基板上に基板温度 400°C で形成した単結晶膜である. BF 像より, MgO から FePt 全体にかけて連続した格子増がみられる. 格子不整合の影響を明確化するため, 高速フーリエ変換(Fast Fourier Transform, FFT)を用いて BF 像の解析を行った. Fig.5.3.4(b)に, MgO(200)面および FePt(200)面の回折スポットについて逆フーリエ変換(Inverse FFT, IFFT)を行った結果を示す. IFFT 像から, MgO 基板との格子不整合の影響は転移発生により数原子層で緩和されていることがわかる. この結果から, 格子不整合起因の面内引張応力によるバリエント低減[3-4]は膜厚 2 nm 以上では既にみられず, MgO とエピタキシャル性を持つ領域においてもバリエントが形成されたと予想される.

膜厚の減少によって K, S が低下する原因を考察するため, 詳細に Cs-STEM による観

察を行った. Fig.5.3.5 に単結晶膜および多結晶膜における表面付近の HAADF-STEM 像を示す. いずれの試料も膜厚 $d = 10 \text{ nm}$ であり, 基板温度 $T_s = 400 \text{ }^\circ\text{C}$ で形成したものである. 図中には最表層部分の拡大図を示す. 単結晶膜, 多結晶膜いずれも, 最表面に Pt 層が 2 層連続で形成されていることが観察された. これは, 薄膜堆積中に Pt が薄膜の最表面に絶えず形成される現象(Pt の表面偏析[10-12])が L_{10} -FePt の成膜中に生じていることを示唆している. 成膜中に Pt 表面偏析と原子の表面拡散が組み合わされることで, 面直方向に Fe 層と Pt 層が交互に形成され, 膜面垂直方向への規則化が促進されることが考えられる(natural-bilayer stacking[13-15]).

もし膜形成初期段階で Pt 表面偏析が生じている場合, 膜中の組成が変化し, 一軸磁気異方性の Fe 組成依存性のピークが低 Fe 組成側に移動することが予想される. これを検討するため, 膜厚の異なる多結晶膜について一軸磁気異方性の Fe 組成依存性を比較した. Fig.5.3.6 に膜厚 $d = 2, 10 \text{ nm}$ の多結晶膜における AHE トルク解析で得られた一軸磁気異方性定数 K, K_1, K_2 の Fe 組成依存性を示す. 試料は基板温度 $T_s = 400 \text{ }^\circ\text{C}$ で形成した. K は膜厚 $2 \text{ nm}, 10 \text{ nm}$ いずれも $50 \text{ at.}\%$ Fe において最大を示した. これは, 膜形成初期段階において Pt の表面偏析が生じていないことを裏付ける結果である. 膜厚 2 nm において, 膜厚 10 nm と比較して K が小さい. これは Pt 表面偏析が生じていないことで規則度が低下したためである. 膜厚 2 nm において K_1 と K_2 の比が Fe 組成によらず一定なのは, 膜厚 10 nm と比較してバリエーションが少ないためと考えられる.

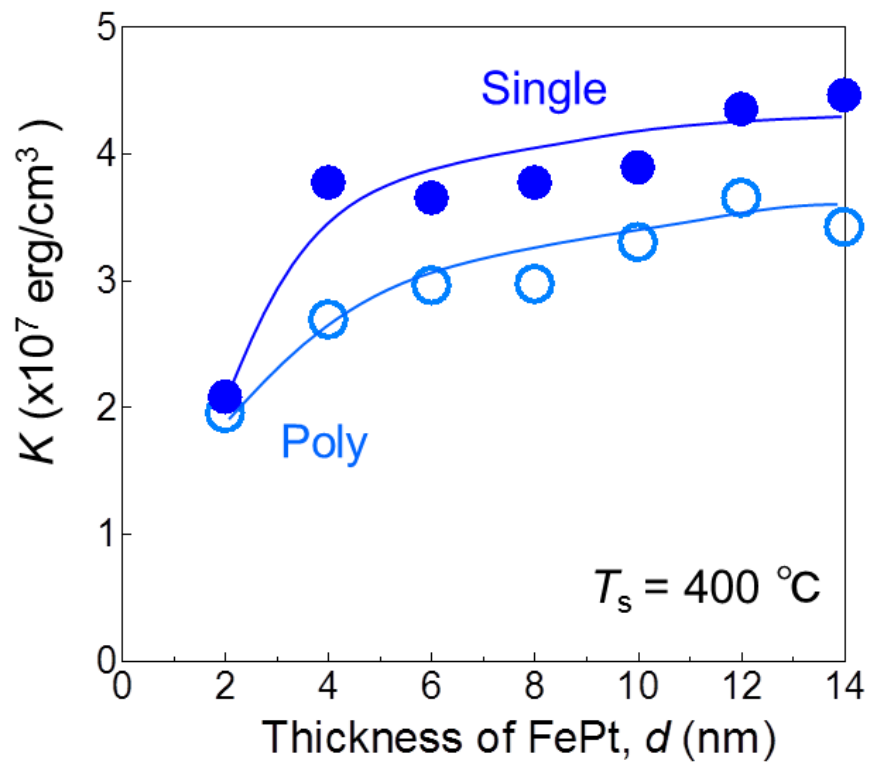


Fig. 5.3.1 $L1_0$ -FePt 多結晶膜(○), 単結晶膜(●)の AHE トルク解析で得られた一軸磁気異方性 K の膜厚 d 依存性.

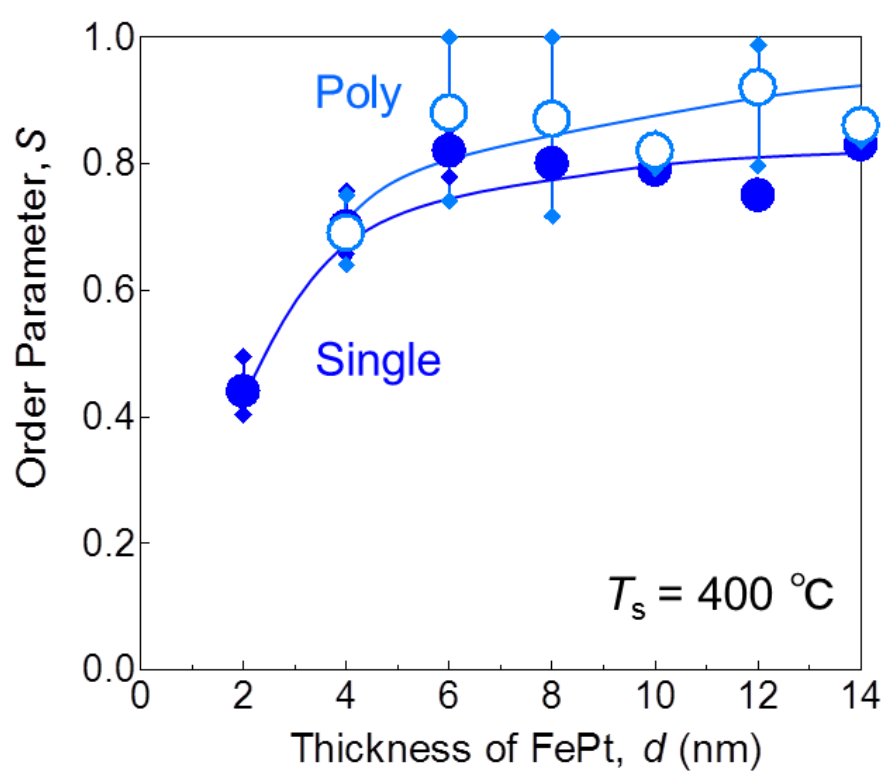


Fig. 5.3.2 $L1_0$ -FePt 多結晶膜(○), 単結晶膜(●)の規則度 S の膜厚 d 依存性.

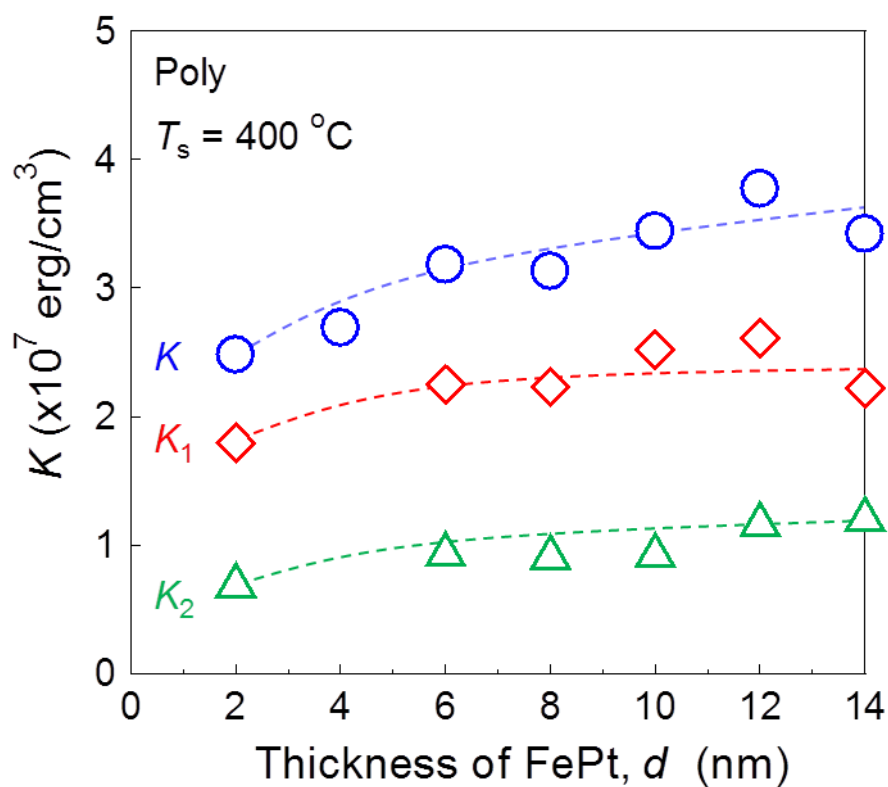


Fig. 5.3.3 $L1_0$ -FePt 多結晶膜の AHE トルク解析で得られる一軸磁気異方性定数 K (\circ), K_1 (\diamond), K_2 (\triangle)の膜厚 d 依存性.

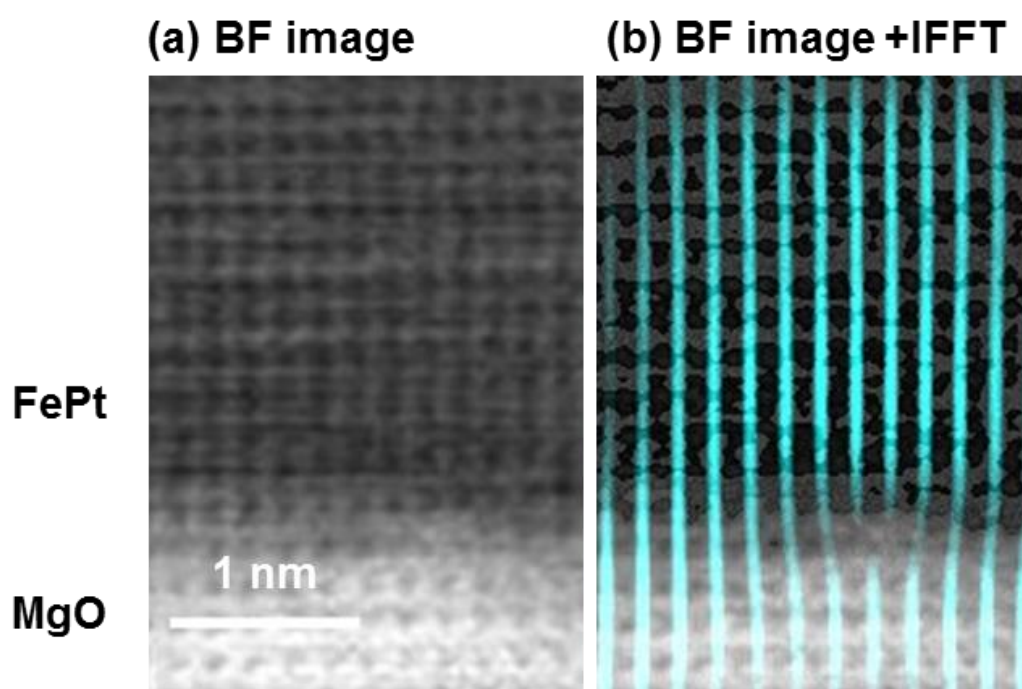
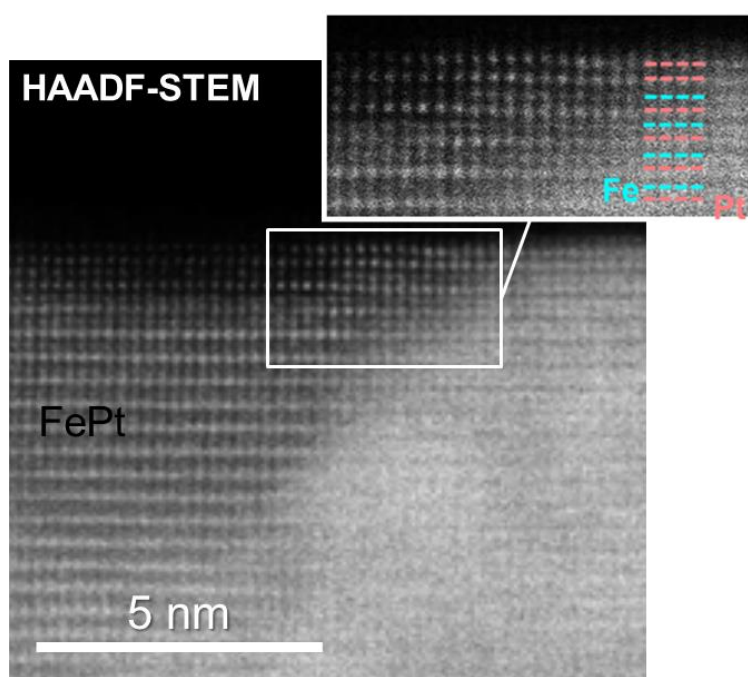


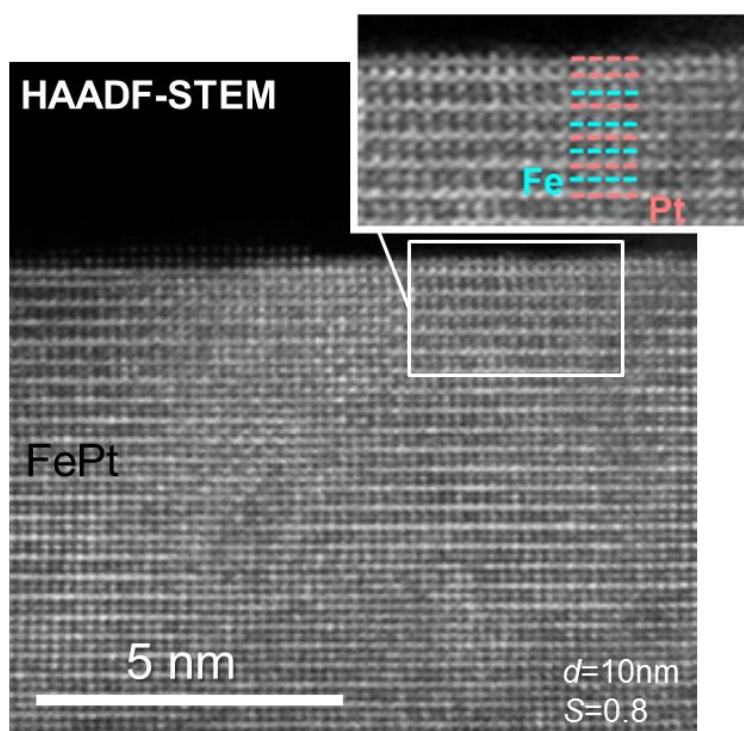
Fig. 5.3.4 MgO(100)単結晶基板上に形成した $L1_0$ -FePt 単結晶膜の STEM 像.

(a)bright-field(BF)像, (b)BF 像と IFFT 像の重ね合わせ.

IFFT 像は FePt(200)と MgO(200)の回折スポットを用いて評価した.



(a) Single crystal film on MgO substrate



(b) Polycrystalline film on MgO seed layer

Fig. 5.3.5 FePt 薄膜の表層に着目した HAADF-STEM 像. (a)単結晶膜, (b)多結晶膜. 各図中に最表面部分の拡大図を示す. 最表面に Pt 層が 2 層連続で形成されている.

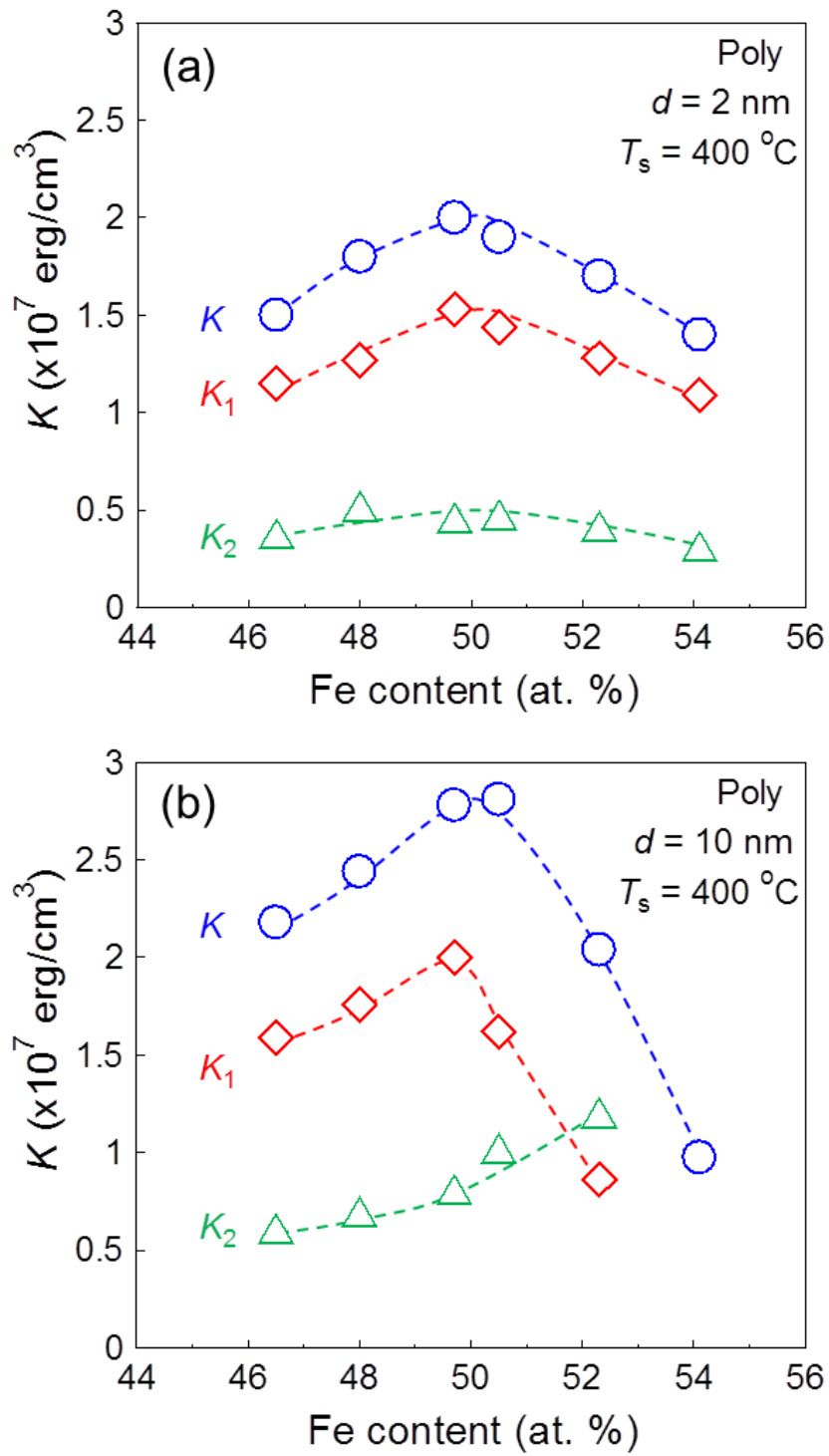


Fig. 5.3.6 AHEトルク解析で得られる一軸磁気異方性定数 K (○), K_1 (◇), K_2 (△)のFe組成依存性. (a) $d = 2$ nm, (b) $d = 10$ nm.

5.4 結言

本章では、 $L1_0$ -FePt 多結晶膜における、規則度およびバリエントといった結晶構造と一軸磁気異方性の基板温度および膜厚に対する依存性を調べ以下の知見を得た。

◆ 基板温度依存性

基板温度を 250-480 °C まで変化させ、膜厚を 10 nm として作製した $L1_0$ -FePt 多結晶膜について単結晶膜と比較しながら結晶構造と一軸磁気異方性の関係について調べた。

単結晶膜においては、基板温度の増加とともにバリエント存在率は減少し、バリエント成分の規則度は徐々に低下した。

一方、多結晶膜においては単結晶膜と比較して、基板温度 250 °C から面直方向へ高い規則度 ($S = 0.6$) を示すものの、バリエントが多く形成されていることがわかった。さらに、基板温度の増加にともなってバリエント存在率はわずかに増加し、バリエント成分の規則度も増加した。基板温度 480 °C では $K_{u2} = 1-3.5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ とするとバリエント存在率は $f_v = 15-20 \text{ vol. \%}$ であることがわかった。バリエント存在率の増加は、基板温度の増加により MgO 粒界を超えて成長する領域が増加したためと考えられる。

なお、バリエントの影響を除くと、多結晶膜においても K_u は規則度 S の二乗に比例することが実験的に確かめられ、第一原理計算の予想と一致した。

◆ 膜厚依存性

膜厚を 2-14 nm まで変化させ、基板温度を 400 °C として作製した $L1_0$ -FePt 多結晶膜について構造と一軸磁気異方性の関係について調べた。

すべての膜厚でバリエントが存在しており、膜厚の減少とともにバリエントは徐々に低下することを明らかにした。MgO 粒界を超えて成長する FePt 粒子がほとんど存在しないと考えられる数 nm の膜厚でのバリエント形成は、MgO 下地層との格子不整合に起因する、面内張力の増加によるバリエント抑制効果が数原子層で緩和されたためと考えられる。

膜厚の減少にともない規則度、一軸磁気異方性はともに低下していた。薄膜堆積中の Pt 表面偏析と原子の表面拡散が組み合わされることで FePt の面直方向への規則化を促進していると考えられる。一軸磁気異方性の Fe 組成依存性の解析結果から、膜形

成初期段階において Pt の表面偏析が生じておらず,これが規則度の低下を引き起こしたと示した.

参考文献

- [1] K. Barmak, J. Kim, L. H. Lewis, K. R. Coffey, M. F. Toney, A. J. Kellock, and J.-U. Thiele, *J. Appl. Phys.*, **98**, 033904 (2005).
- [2] Y. K. Takahashi, and K. Hono, *Magn. Soc. Jpn.*, **29**, 72 (2005).
- [3] Y. Fuji, T. Miyazaki, S. Okamoto, O. Kitakami, Y. Shimada, and J. Koike, *J. Magn. Soc. Jpn.* **28**, 376 (2004).
- [4] M. Ohtake, A. Itabashi, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **39**, 167 (2015).
- [5] G. K. Williamson, and W. H. Hall, *Acta Metall.*, **1**, 22 (1953).
- [6] K. Watanebe, private Communication.
- [7] 金属データブック, 日本金属学会編(丸善, 東京, 1993).
- [8] V. L. Vegard, *Z.Phys.*, **5**, 17(1921).
- [9] Y. Kota, and A. Sakuma, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 084705 (2012).
- [10] Y. Gauthier, Y. Joly, R. Baudoin and J. Rundgren, *Phys. Rev. B*, **31**, 6216(1985).
- [11] G. Treglia and B. Legrand, *Phys. Rev. B*, **35**, 4338(1987).
- [12] H. Sephri-Amin, H. Iwama, T. Ohkubo, T. Shima, and K. Hono, *Scr. Mater.*, **130**, 247(2017).
- [13] M. Maret, M. C. Cadeville, A. Herr, R. Poinso, E. Beaurepaire, S. Lefebvre, and M. Bessière, *J. Magn. Magn. Mater.*, **191**, 61(1999).
- [14] S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, T. Miyazaki, Y. Shimada, and K. Fukamichi, *Phys. Rev. B*, **66**, 024413 (2002).
- [15] H. Sato, T. Shimatsu, Y. Okazaki, H. Muraoka, H. Aoi, S. Okamoto, and O. Kitakami, *J. Appl. Phys.*, **103**, 07E114(2008).

第 6 章

バリエントの低減と高規則化に適した プロセスの検討

6.1 緒言

第 5 章までの結果から, $L1_0$ -FePt 多結晶膜において, 基礎的な成膜プロセス制御による磁気異方性向上, 高規則化とバリエント低減の両立には限界があることがわかった. バリエント形成の低減には FePt の核形成から二次元成長を制御するプロセスの改善が必要と考えられる.

本章では, $L1_0$ -FePt 多結晶膜の形成において, 磁気異方性向上, 高規則化とバリエントの抑制に有効な手法を明らかにすることを目的とした.

一般に, 薄膜の初期成長過程に影響する因子には, 下地層との格子不整合や下地層の表面エネルギーがある. 格子不整合は, 序論や第 5 章でふれたように, 薄膜の応力状態に影響するが, 高温での膜形成では数原子層で格子不整合の緩和が予想される. 下地層の表面エネルギーが大きい場合, スパッタ原子が表面を覆うように二次元成長が促進される(よく濡れる). 二次元成長の促進は下地層の粒界をまたぐ FePt の粒成長を助長し, この場合, 4.3 節に述べたようにバリエントの形成が予想される. ここでは割愛するが, 本研究において, 上記の 2 つの因子についても検討を行ったところ, 高規則化とバリエント抑制に顕著な効果は得られなかった.

本章では, FePt の核形成から二次元成長を制御するため, MgO 下地層の表面改質と C(炭素)の粒界への析出(C の吐出し効果)を利用した.

6.2 節では, プラズマエッチングにより MgO 下地層の表面改質を行った. MgO 表面に原子欠損を生じさせることで, 局所的に高エネルギーな場所を複数作り出し, FePt の核形成を密にすることを想定した. Fig.6.1.1 に示すように, FePt の核形成密度を高くするこ

とで MgO 粒界を超える FePt の形成を抑制でき、バリエントの低減が予想される。

6.3 節では, FePt と C を同時成膜することで, C の強い粒界析出により MgO 粒界を超えた FePt の膜成長を制御し, バリエント抑制, 規則度と磁気異方性向上を目的とした。Fig.6.1.2 に示すように, FePt-C の膜成長過程で C は FePt の粒界に析出し, 粒径微細化と磁気異方性向上を実現できる粒界材料であり, FePt 媒体の初期層を制御するテンプレートとしての利用が検討されている[1-2]。

6.4 節に結言をまとめる。

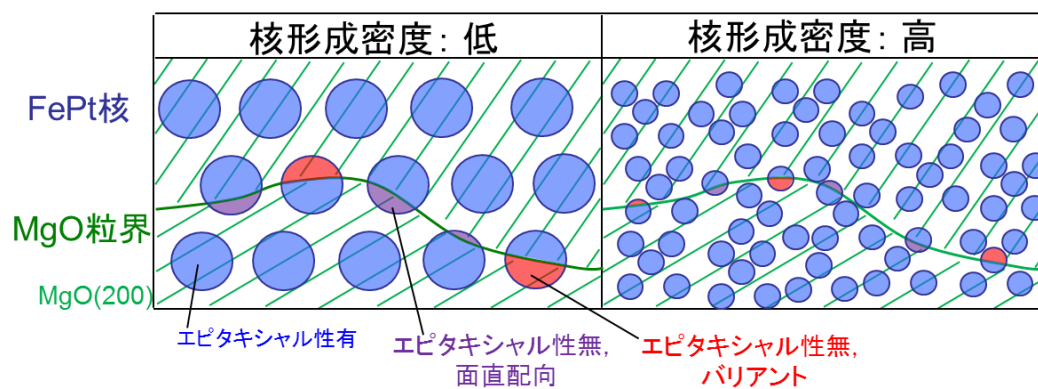


Fig. 6.1.1 核形成密度によるバリエント低減の模式図.

FePt の核形成密度が高くすることで MgO 粒界を超える粒形成が抑制されることが考えられる. MgO 層とのエピタキシャル性の無い領域が減少することでバリエント低減が予想される.

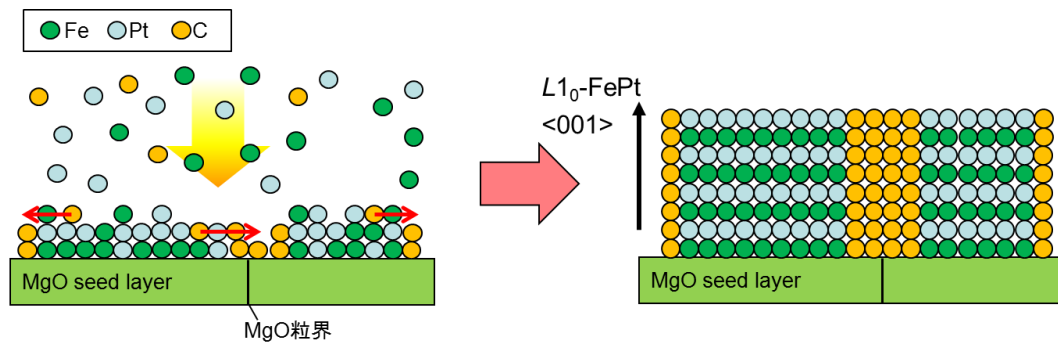


Fig. 6.1.2 C の吐出し効果の模式図.

FePt と C の同時成膜により, C は FePt 粒界へ析出される.
 これにより FePt 粒子の規則化と粒径微細化が促進される.

6.2 MgO 下地層の表面改質

Fig.6.2.1 に MgO 下地層の表面改質に用いた実験装置の模式図を示す. MgO 下地層を形成後, Ar 30 sccm + O₂ 5 sccm または Ar 30 sccm を導入し, rf 放電(50-300 W)によりプラズマを形成して 180 秒間 MgO 表面をプラズマエッチング処理した上で, FePt 薄膜を形成した. O₂ ガスを導入する場合, 膜表面の酸化反応が促進され(プラズマ酸化[3-4]), MgO 表面の酸素欠損への補填も予想される. なお, 表面処理装置の都合上, L1₀-FePt 多結晶膜は基板温度 350 °C, 膜厚 10 nm の条件で作製した.

表面処理の条件を検討するため, 導入ガスや投入 RF 電力を変化させて試料を作製した. Fig. 6.2.2 に AHE トルク解析で得られた一軸磁気異方性 K , K_1 , K_2 の RF 電力依存性を示す. なお, 図中には Ar + O₂(塗潰し)および Ar(白抜き)を導入ガスとしたときの結果を比較として示す. いずれの導入ガス条件においても, 50-100 W まで K_1 は増加し, K_2 は低下している. これらの結果はバリエントの低減を示唆している. Fig. 6.2.3 に同じ試料について, XRD で評価した MgO(200)面の回折ピークの積分強度の rf 電力依存性を示す. いずれの導入ガス条件においても 100 W 以下では, ピーク強度はほぼ一定である. これらの結果から, 酸素欠損への補填効果ではなく, 低電力の条件でのエッチング処理により MgO 表面に局所的な欠損が生じ, FePt の核形成が密になることでバリエントが抑制されたと考えられる.

上述の結果や磁気特性, 構造解析結果をふまえて, 導入ガス Ar 30 sccm + O₂ 5 sccm, RF 50 W を最適な表面処理条件と決定した. Fig.6.2.4(a)に, 表面処理した MgO 上に形成した FePt 多結晶膜の磁化曲線を示す. Fig.6.2.4(b)に表面処理をしていない MgO 上に同条件で形成した FePt 多結晶膜の磁化曲線を比較として示す. 表面処理により, 面内の磁化曲線の傾きとヒステリシスが減少している. これは, 規則度向上に伴う磁気異方性の増加もしくはバリエントの低減を示唆している. これら 2 試料の構造解析, 磁気特性評価結果を Table 6.2.1 にまとめた. 表面処理により規則度はわずかに増加し, それに対応して K も増加している. K_1 と K_2 の比から算出したバリエント存在率は表面処理により半分程度まで低減した.

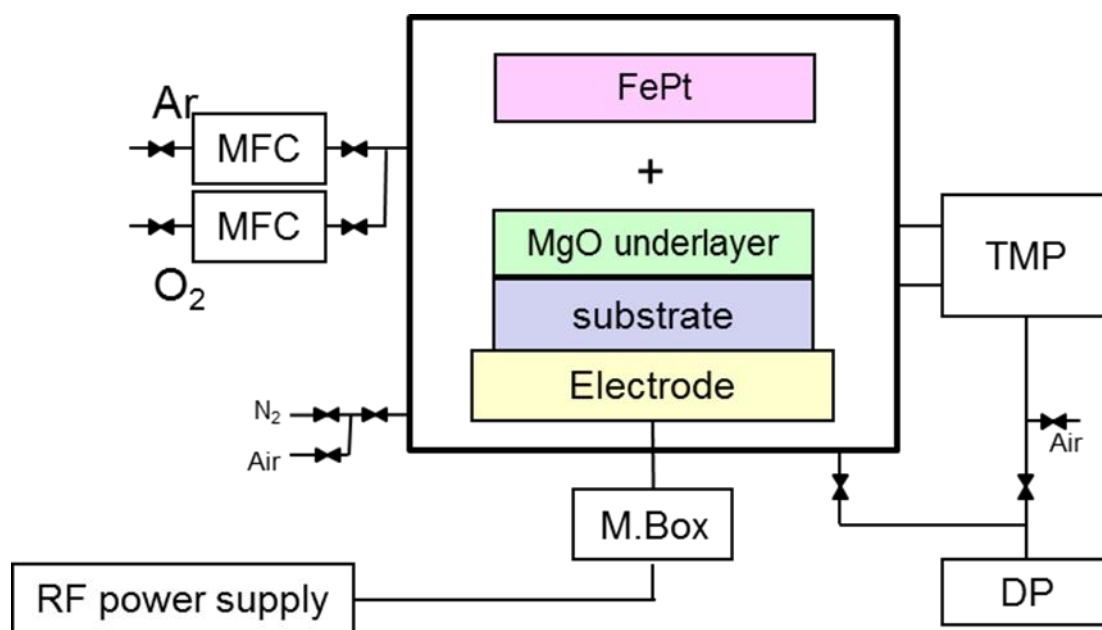


Fig. 6.2.1 表面改質における実験装置の模式図. MgO 下地層を形成後 Ar 30 sccm + O₂ 5 sccm または Ar 30 sccm を導入し, RF 放電(50-300 W)によりプラズマを形成して 180 秒間 MgO 表面をプラズマエッチング処理した後, FePt 薄膜を形成した.

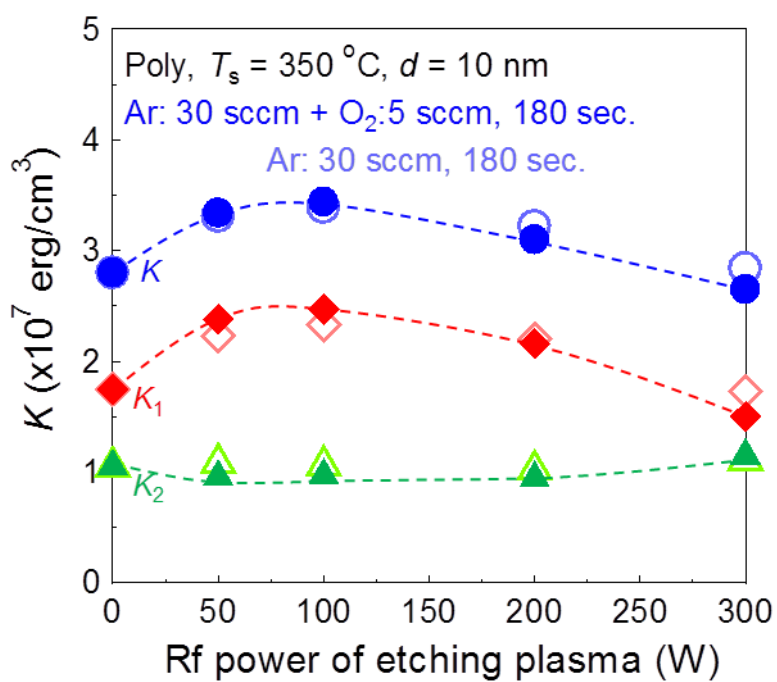


Fig. 6.2.2 表面処理の rf 電力による一軸磁気異方性 K (○), K_1 (◇), K_2 (△)の変化.
 図には Ar + O_2 (塗潰し)および Ar(白抜き)を導入ガスとしたときの結果を比較として示す.

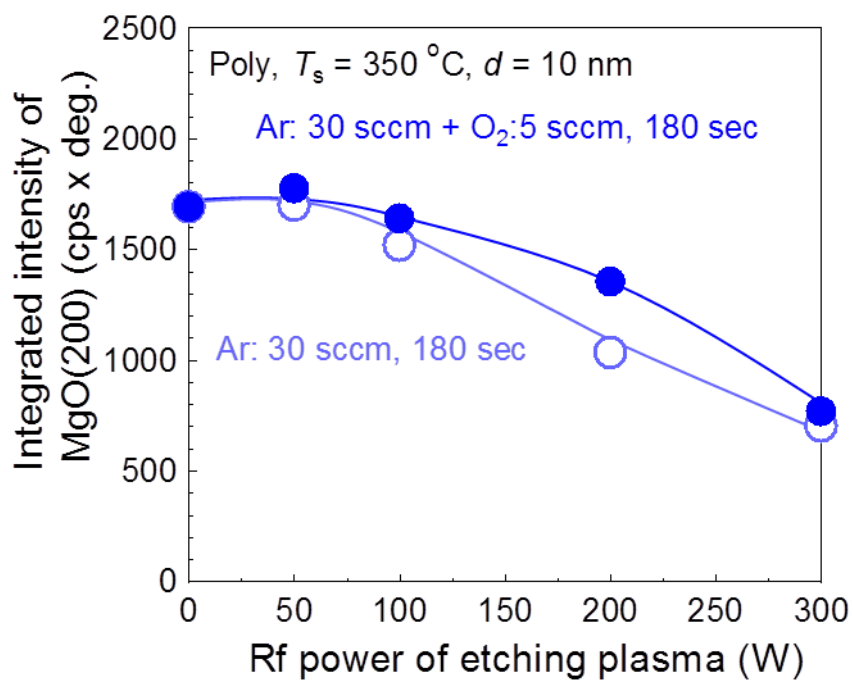


Fig. 6.2.3 表面処理の rf 電力による MgO(200)回折ピークの変化.

図には Ar + O₂(塗潰し)および Ar(白抜き)を導入ガスとしたときの結果を比較として示す.

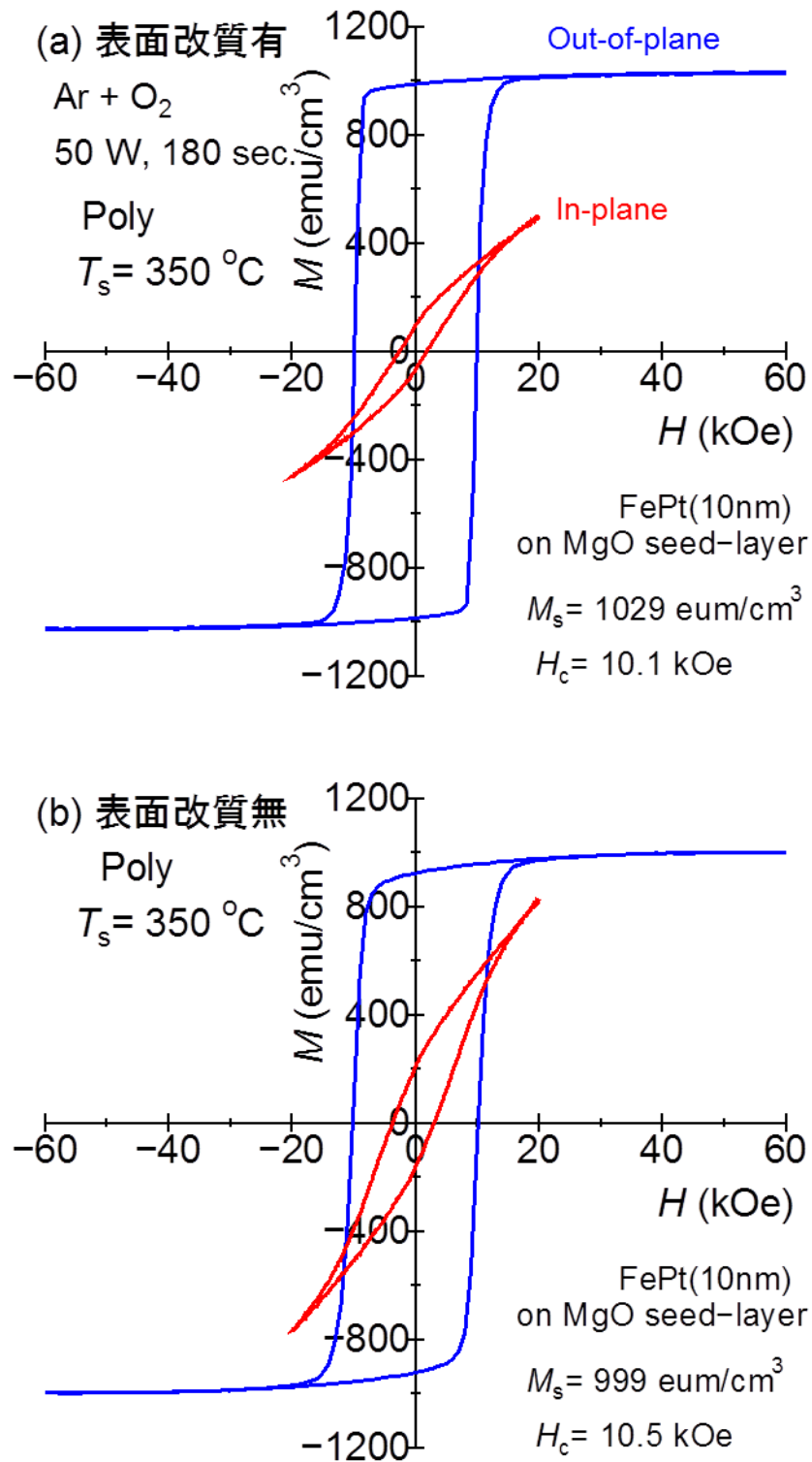


Fig. 6.2.4 MgO 下地層の表面改質による $L1_0$ -FePt 多結晶膜の磁化曲線の変化.
(a)表面改質(処理条件: Ar 30 sccm + O₂ 5 sccm, rf 50 W, 180 sec), (b)表面改質無し.

Table 6.2.1 表面改質による構造と一軸磁気異方性の変化.

処理条件: Ar 30 sccm + O₂ 5 sccm, rf 50 W, 180 sec. .

表面改質	規則度 S 面直XRD	K_u ($\times 10^7$ erg/cm ³)			f_v (vol.%)	
		K_1	K_2	K	$K_{u2}=1 \times 10^6$ erg/cm ³	$K_{u2}=3.5 \times 10^6$ erg/cm ³
無	0.79	1.33	1.23	2.56	24.5	22.5
有	0.83	2.44	0.86	3.30	15.5	10

6.3 C の吐出し効果

FePt と C を同時スパッタすることで、MgO 多結晶下地層上に膜厚 4 nm の FePt-24 vol.% C 薄膜を作製した。試料はグラニュー化により AHE 信号のノイズが増大したため、AHE トルク波形解析によるバリエント存在率の定量評価は困難であった。そのため、平面 TEM 観察を用いたナノ領域の回折スポット解析によりバリエントの存在を評価した。

Fig.6.3.1(a), (b)に各々表面処理を行っていない MgO 下地層上、表面処理を行った MgO 下地層上に形成した FePt-C 薄膜の平面 TEM 像から結晶方位を評価した結果を示す。図中、面直規則化領域は赤、バリエント領域は緑で示されている。表面改質を行っていない MgO 下地上に形成した FePt-C 膜においては多くのバリエント領域が観察された。一方、表面改質を行った MgO 下地層上に形成した FePt-C 膜においてはバリエント領域が著しく減少していることがわかる。Table 6.3.1 に FePt-C 膜における AHE トルク解析で得られた一軸磁気異方性 K とバリエント領域の割合を示す。FePt 多結晶膜同様に、FePt-C においても表面改質により一軸磁気異方性は増加していた。バリエント領域は C 添加と MgO 下地層の表面改質を組み合わせることで、3 % 程度まで抑制されていることがわかった。

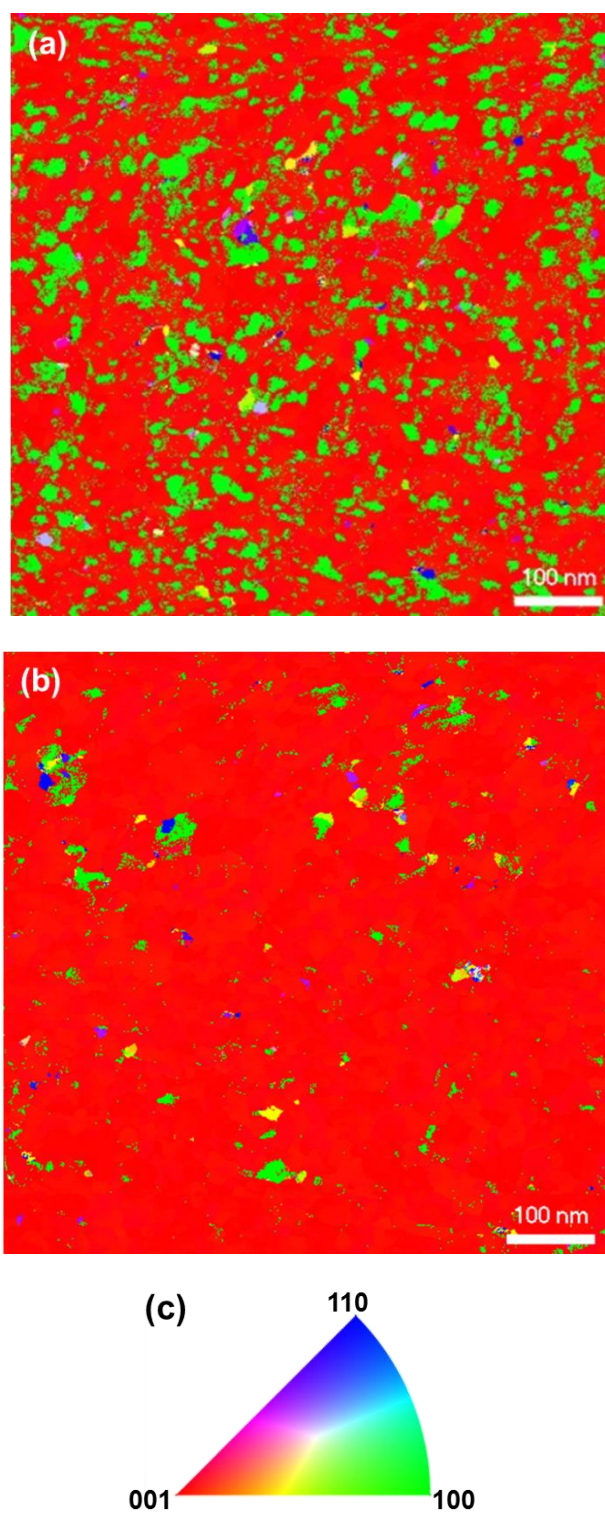


Fig. 6.3.1 FePt-24vol. %C(4 nm)の結晶方位図.

MgO 下地層の表面改質(a)無, (b)有. (c)結晶方位.

表面改質を行った MgO 下地層上に形成した FePt-C 膜(b)においてはバリエント領域が著しく減少していることがわかる.

Table 6.3.1 FePt-25 vol.% C(4 nm)における MgO 層の表面改質の有無による
一軸磁気異方性とバリエントの割合の変化

表面改質	$K(\times 10^7 \text{ erg/cm}^3)$	Percentage of variant (%)
無	1.67	24.3
有	2.37	2.9

6.4 結言

本章では, $L1_0$ -FePt 多結晶膜において, FePt の核形成, 二次元成長過程を成膜プロセスにより制御することでバリエント抑制と高規則化, 磁気異方性向上することを検討した.

◆ 表面改質

プラズマエッチングを用いた MgO 下地層の表面処理により, FePt 多結晶膜の規則度 S はわずかに増加し, バリエント存在率 f_v は半分程度に低下した. MgO 表面に局所的な欠損を生じさせることで, FePt の配向性を維持しながら, 核形成密度が増加したと推定される.

◆ C の吐出し効果

表面改質と Fe, Pt, C の同時成膜による C の粒界析出(C の吐き出し効果)を組み合わせることで, 多結晶グラニューラー膜において, 磁気異方性 K を 40% 増加し, バリエント存在率を 5% 以下まで低減することに成功した.

参考文献

- [1] T. Ono, T. Moriya, M. Hatayama, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, and T. Shimatsu, *J. Appl. Phys.*, **115**, 17B709 (2014).
- [2] B. S. D. Ch. S. Varaprasad, M. Chen, Y. K. Takahashi, and K. Hono, *IEEE Trans. Magn.*, **49**, 718 (2013).
- [3] M. Tsunoda, S. Yoshimura, and M. Takahashi, *Material Jpn.*, **43**, 492(2004).
- [4] R. Goto, Y. Takahashi, N. Tezuka, K. Inomata, S. Sugimoto, and K. Hono, *J. Japan Inst. Met. Mater.*, **71**, 258(2007).

第7章

結論

本研究では、次世代高密度磁気記録媒体の実現に向けて、 $L1_0$ -FePt 多結晶膜における構造(バリエント, 規則度)と一軸磁気異方性に係わる問題点を浮き彫りにし、高い面直方向への規則度をもつ多結晶膜形成の為の指針を得ることを目的とした。

1. 磁気トルク波形にもとづくバリエント存在率の定量評価法

異常ホール効果を用いて評価した磁気トルク波形の解析によって得られる一軸磁気異方性の一次および二次係数である K_1 , K_2 の比はバリエント存在率に依存することを明らかにした。FePt 本来の一軸磁気異方性の二次の項である K_{u2} と、面直規則化成分とバリエント成分の一軸磁気異方性の比を考慮して K_1 , K_2 の比を解析することでバリエント存在率を定量評価できる手法を確立した。

2. バリエント形成機構と AHE トルク解析によるバリエント存在率

$L1_0$ -FePt 多結晶膜のバリエントの構造解析により、MgO 下地層の粒界を超えて二次元成長する FePt 粒子の一部がバリエントを形成していることがわかった。バリエントの形成は MgO 下地層とのエピタキシャル性が失われ、面直規則化への優先性が無くなることで生じていると示した。バリエント粒子は面直規則化した粒子と比べて小さく、薄膜平面に多数分布していることがわかった。さらに、バリエント存在率は 10 vol. % 以上にも達することを定量的に解明した。

3. $L1_0$ -FePt 多結晶膜の構造と一軸磁気異方性の基板温度および膜厚依存性

多結晶膜は単結晶膜と比較して低温から規則化が促進するものの、バリエントが多く形成されていることがわかった。さらに、基板温度の増加によりバリエント存在率は増加し、バリエント成分は規則化が進むことを明らかにした。バリエント存在率の増加は基板温度増加にともなう FePt の粒成長により MgO 粒界を越える領域が増加したためであると示した。一方、単結晶膜では基板温度の増加によりバリエント存在率は低下し、バリエント成分の規則度は低下した。

nm オーダーの膜厚でバリエントは存在しており、膜厚の減少とともにバリエントは徐々に減少することがわかった。MgO 粒界を越える FePt 粒子がほとんど存在しないと考えられる膜厚でのバリエントの形成は、MgO 下地層との格子不整合に起因する面内張力の増加によるバリエント抑制効果が数原子層で緩和されているためであることを示した。膜厚の減少で一軸磁気異方性および規則度が低下した。薄膜堆積中に生じる Pt の表面偏析と原子の表面拡散が組み合わせられることにより、面直方向へ Fe と Pt の原子層が交互に形成され、面直方向の規則化を促進していると考えられる。膜形成初期段階では Pt の表面偏析が生じていないため一軸磁気異方性が低下していることを示した。

4. バリエント低減と高規則化に適したプロセスの検討

MgO 下地層表面への局所的な欠損の形成を目的としたプラズマエッチングと、FePt と C の同時成膜による、C の粒界析出を利用した粒径微細化と規則化促進効果を組み合わせることで、 $L1_0$ -FePt 多結晶膜において、バリエント低減と高規則化を両立できることを明らかにした。

論文, 発表リスト

査読付き論文

著者名: A. Hotta, T. Ono, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, T. Shimatsu,

論 文: Magnetic anisotropy and crystal domain variant in $L1_0$ -FePt polycrystalline films

掲載誌: *IEEE Trans. Magn.*, **52**, 3200803, 2016

著者名: A. Hotta, T. Ono, M. Hatayama, K. Tsumura, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami and T. Shimatsu

論 文: Magnetic anisotropy and order structure of $L1_0$ -FePt(001) single-crystal films grown epitaxially on (001) planes of MgO, SrTiO₃, and MgAl₂O₄ substrates

掲載誌: *J. Appl. Phys.*, **115**, 17B712(1-3), 2014

国際会議発表

著者名: ○A. Hotta, T. Ono, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, T. Shimatsu,

題 目: Magnetic anisotropy and crystal domain variant in $L1_0$ -FePt polycrystalline films

会 場: The 13th Joint MMM-Intermag Conference, San Diego, California, January 11-15, 2016

著者名: ○A. Hotta, T. Ono, M. Hatayama, K. Tsumura, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami and T. Shimatsu

題 目: Magnetic anisotropy and order structure of $L1_0$ -FePt(001) single-crystal films grown epitaxially on (001) planes of MgO, SrTiO₃, and MgAl₂O₄ substrates

会 場: the 58th Annual Magnetism and Magnetic Materials Conference, Denver, Colorado, November 4-8, 2013

国内学会発表

著者名：○堀田 明良, 小野 拓也, 島津 武仁, 菊池 伸明, 岡本 聡, 北上 修

題 目： $L1_0$ -FePt 多結晶膜における磁気異方性とバリエーション形成の Fe 組成依存性

会 場： 日本磁気学会, 8pC-3, 名古屋大学, 2015 年 9 月

著者名：○堀田 明良, 小野 拓也, 島津 武仁, 菊池 伸明, 岡本 聡, 北上 修

題 目： $L1_0$ -FePt 多結晶垂直磁化膜の Pt 表面偏析と規則度の Pt 組成依存性

会 場： 日本磁気学会, 3pE-3, 慶應義塾大学, 2014 年 9 月

著者名：○堀田 明良, 小野 拓也, 島津 武仁, 菊池 伸明, 岡本 聡, 北上 修

題 目： $L1_0$ -FePt 垂直磁化膜の一軸磁気異方性の膜厚依存性

会 場： 日本磁気学会, 4pD-1, 北海道大学, 2013 年 9 月

謝辞

本論文は 2013 年から現在に至るまでの期間、東北大学大学院工学研究科電子工学専攻に在籍した際に行った研究内容をまとめたものである。

本研究を遂行するにあたり、「MgO 下地膜上に形成した FePt 規則合金多結晶垂直磁化膜の構造と磁気異方性」という興味深いテーマを与えていただき、磁性材料、真空技術の基礎からご指導をいただくとともに、日々、適切なご指導ならびにご鞭撻を賜りました、東北大学学際フロンティア研究所 島津 武仁 教授に深く感謝いたします。

本論文をまとめるにあたり、研究内容に関してご討論いただき、適切なご助言をいただきました、東北大学多元物質科学研究所 北上 修 教授、東北大学電気通信研究所 石山 和志 教授に深く感謝いたします。

本研究を遂行するにあたり、磁性材料の評価等において、専門的な知識でご助言を賜りました東北大学多元物質研究所の岡本聡准教授、菊池伸明助教授に心から感謝いたします。

本研究を遂行するにあたり、適切なご助言を賜りました東北大学工学研究科の遠藤恭准教授に深く感謝申し上げます。

研究生活において、広くご助言、ご協力を賜りました、堀口剛名誉教授に深く感謝いたします。

X 線回折による物性評価に関して多大なるご協力を賜りました、研究基盤技術センター 評価部の丹野健徳さんに感謝いたします。

走査型電子顕微鏡による構造評価に関して多大なるご協力を賜りました、研究基盤技術センター 評価部の阿部真帆さんに感謝いたします。

本研究を遂行するにあたり、共に実験を進めていただき、日頃から幅広い知識でご助言頂いた、富士電機株式会社の佐藤公紀さん、小宮山和弥さん、内田真治さん、大山浩永さん、小野拓也さん、菊池洋人さん、片岡弘康さん、古田旭さん、中田仁志さん、森谷友博さん、由沢剛さんに感謝いたします。小野拓也さんには、研究の細部にわたりご指導、ご助言頂き、深く感謝いたします。実験を遂行するにあたり、薄膜作製にご協力いただき、広くご助言を頂いた畑山正寿さん、津村郁さんに感謝いたします。研究室生活において、様々な面でお世話になりました、秘書の古村久美子さん、佐藤安由美さん、研究員の魚本幸さん、松浦瑞江さんに感謝いたします。同研究室におきまして苦楽を共にした、今一恵さん(現 並木精密宝石株式会社)、中山湧稀くん(現 富士電機株式会社)、島田恭平くん(現 富士電機株式会社)に感謝いたします。

研究生活において様々な面でご協力いただいた, 市川 将嗣さんをはじめとする島津研究室の皆様, 北上研究室の皆様に感謝いたします.

最後に, 研究生活において, 経済的, 精神的に支えてくれた家族に心から感謝し, 本論文を締めさせていただきます.